

Ladungsträgerdynamik und Photoströme im Dirac-Kegel topologischer Isolatoren

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

dem

Fachbereich Physik

der Philipps-Universität Marburg

vorgelegt von

Master of Science

Johannes Reimann

aus Berlin-Lichtenberg

Universitätsstadt Marburg, 2018

Eingereicht am: 27.08.2018
Als Dissertation angenommen am: 17.10.2018
Erstgutachter: Prof. Dr. rer. nat. Ulrich Höfer
Zweitgutachter: Prof. Dr. rer. nat. Martin Koch
Tag der mündlichen Prüfung: 01.11.2018
Hochschulkennziffer: 1180

REIMANN, Johannes:

Ladungsträgerdynamik und Photoströme im Dirac-Kegel topologischer Isolatoren,
Philipps-Universität Marburg, Dissertation, 2018

FÜR KATJA

Zusammenfassung

In dieser Dissertation werden Experimente vorgestellt und diskutiert, die einen Beitrag zum grundlegenden Verständnis der ultraschnellen Dynamik von Elektronen und Photoströmen im topologisch geschützten Oberflächenzustand dreidimensionaler topologischer Isolatoren leisten. Am Wichtigsten im Hinblick auf künftige Anwendungen ist dabei vermutlich die Entdeckung, dass sich mit THz-Strahlung in solchen Oberflächenzuständen elektrische Ströme treiben lassen, bei denen spinpolarisierte Elektronen Distanzen von einigen hundert Nanometern nahezu verlustfrei ballistisch überwinden. Auf dieser Basis lässt sich möglicherweise eine neue, Lichtwellen-getriebene Elektronik realisieren, die um drei und mehr Größenordnungen schneller wäre als die derzeitige Elektronik, deren Taktfrequenz auf den GHz-Bereich beschränkt ist.

Die vorgestellten Experimente basieren auf der zeit- und winkelaufgelösten Photoelektronenspektroskopie und wurden insbesondere an den Materialien Sb_2Te_3 und Bi_2Te_3 durchgeführt, die zu den wichtigsten Prototypen dreidimensionaler topologischer Isolatoren gehören. Für die transiente Anregung von Elektronen und Photoströmen im topologisch geschützten Oberflächenzustand dieser Materialien wurden neue experimentelle Ansätze unter Verwendung ultrakurzer Laserimpulse im mittleren Infrarot (MIR) und im THz-Bereich entwickelt. Damit konnten grundlegend neue Erkenntnisse zu drei verschiedenen Themenkomplexen erzielt werden.

Zunächst konnte durch die winkelaufgelöste Zweiphotonen-Photoemission (2PPE) mit Anregungsenergien im Sichtbaren erstmals die Existenz eines Dirac-Kegels in der Bandlücke von Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ unzweifelhaft nachgewiesen werden. Aufgrund der intrinsischen p-Dotierung ist dieser fast vollständig unbesetzt und damit für die konventionelle winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie nicht zugänglich. Durch zeitaufgelöste Messungen konnte gezeigt werden, dass die Lebensdauer der angeregten Elektronen im Dirac-Kegel beider Materialien vor allem durch die Streuung mit Elektronen im teilweise unbesetzten Volumen-Valenzband der p-dotierten Kristalle begrenzt wird. Aus temperaturabhängigen Messungen konnte gefolgert werden, dass die Elektron-Phonon-Streuung von untergeordneter Bedeutung ist, für bestimmte Anregungsenergien im Oberflächenzustand dagegen die Kopplung an das Volumen-Leitungsband einen starken Einfluss auf die beobachtete Dynamik hat.

Durch den Einsatz von Laserimpulsen im mittleren Infrarot konnte in Sb_2Te_3 ferner erstmals eine direkte optische Anregung eines topologischen Oberflächenzustands demonstriert werden. Dabei zeigt sich, dass sich für Photonenenergien um 0,3 eV re-

sonante optische Übergänge zwischen dem besetzten und unbesetzten Teil des Dirac-Kegels induzieren lassen. Diese niederenergetische, direkte Anregung resultiert einerseits in einer bezüglich der Zeit und der Energie stark lokalisierten Besetzung des Oberflächenzustands. Der Zerfall der Besetzung konnte auf diese Weise viel gezielter untersucht werden, als es die indirekte und verzögerte Besetzung nach sichtbarer Anregung erlaubt. Andererseits konnte so für geeignet orientierte Proben eine stark asymmetrische Verteilung im Impulsraum geschaffen werden, was eine Voraussetzung für die Erzeugung von Photoströmen ist.

Durch die zeitaufgelöste Beobachtung der Umverteilung der Besetzung im Impulsraum konnte die für den Stromtransport entscheidende elastische Impulsstreuung der Elektronen isoliert und quantifiziert werden. Die auf diese Weise bestimmte effektive Streuzeit ist mit 2,5 ps viel länger als auf Oberflächen konventioneller Materialien und bestätigt experimentell, dass die spezielle Spinstruktur des Dirac-Kegels tatsächlich mit einer starken Einschränkung für die Impulsstreuung einhergeht. Für bestimmte azimutale Orientierungen der Probe konnte über die Helizität der Anregungsimpulse außerdem eine Variation sowohl der Richtung als auch der Stärke der Asymmetrie erzielt werden, was für die optische Kontrolle von Photoströmen von großem Interesse ist.

Schließlich konnte in enger Kooperation mit der Gruppe von Rupert Huber an der Universität Regensburg ein völlig neuartiges zeit- und winkelaufgelöstes Photoemissionsexperiment realisiert werden. In diesem Experiment werden Elektronen im topologischen Oberflächenzustand durch das elektrische Feld eines intensiven THz-Impulses beschleunigt und mit Hilfe der Photoelektronenspektroskopie mit Subzyklen-Zeitauflösung im Impulsraum beobachtet. Die Apparatur zur Photoelektronenspektroskopie aus Marburg wurde dazu mit dem Laseraufbau der Huber-Gruppe in Regensburg kombiniert. Mit den verwendeten THz-Impulsen bei einer Frequenz um 1 THz und einer Energie von $1 \mu\text{J}$ pro Impuls konnten elektrische Feldstärken von bis zu $2,8 \text{ kV/cm}$ entlang der Oberfläche von Bi_2Te_3 Proben erreicht werden. Dieses Feld führt zu einer deutlichen Beschleunigung der Elektronen im Oberflächenzustand und zu einer Verschiebung des gesamten Fermikreises im Impulsraum um bis zu 7% des Fermiwellenvektors. Damit verbunden ist eine kurzzeitig sehr hohe Oberflächenstromdichte von 2 A/cm .

Ein für die zeitaufgelöste Photoemission neuer, experimenteller Aspekt der THz-Anregung besteht darin, dass die Wechselwirkung der elektrischen THz-Felder mit den photoemittierten Elektronen auch außerhalb der Probe nicht vernachlässigbar ist. Es wurden Verfahren entwickelt, mit denen die Photoelektronenspektren sehr genau korrigiert werden konnten, sodass die THz-Felder im Vakuum keine Einschränkung für die Energie- und Winkelauflösung der Messdaten darstellten. Gleichzeitig konnte mit diesen Verfahren sowohl die absolute Amplitude als auch der genaue Zeitverlauf des elektrischen Feldes an der Oberfläche *in situ* bestimmt werden.

Die genaue Kenntnis des Feldes ermöglicht es, aus der zeitaufgelösten Beobachtung der Elektronenverteilung im Oberflächenzustand, die charakteristischen Streuzeiten für elastische und inelastische Elektronenstreuung zu bestimmen. Dazu wurde die gemessene Elektronenverteilung mit semiklassischen Rechnungen unter Verwendung der Boltzmann-Gleichung verglichen. In Bi_2Te_3 liegen die Streuzeiten in der Größenordnung von 1 ps oder sogar darüber. Es zeigt sich also auch bei einer solchen, echten Transportmessung in der Zeitdomäne, dass die Streuzeit für den ballistischen Elektronentransport in einem topologisch geschützten Oberflächenzustand um mehr als zwei Größenordnungen länger als in konventionellen Materialien ist.

Zusammen mit der trägheitsfreien Beschleunigung der Elektronen im quasirelativistischen Dirac-Kegel ergeben sich damit mittlere freie Weglängen für den ballistischen Transport von einigen hundert Nanometern. Außerdem laufen Elektronenimpulse aufgrund der linearen Dispersion räumlich nicht auseinander. Beide Eigenschaften sind für die Realisierung einer ultraschnellen Elektronik äußerst vorteilhaft. Mit den Ergebnissen dieser Arbeit erscheint es vielversprechend, topologische Isolatoren als Basis für die Entwicklung zukünftiger Lichtwellen-getriebener elektronischer Bauteile zu nutzen, die mit THz-Taktfrequenzen arbeiten.

Abstract

This thesis presents investigations on the ultrafast dynamics of excited electrons and photocurrents in the topologically protected Dirac-cone-like surface state of three-dimensional topological insulators. The focus is on the study of the prototype materials Sb_2Te_3 and Bi_2Te_3 . Probably most important for possible future applications is the discovery, that THz radiation can drive electric currents in the Dirac cone of these materials. These currents consist of spin-polarized electrons which travel ballistically without losses over several hundreds of nanometers. Based on this, it might be possible to realize new light-wave driven electronics in the future, combining low power consumption and clock rates that exceed those of conventional semiconductor devices by at least three orders of magnitude.

The experiments use time- and angle-resolved photoelectron spectroscopy (tr-ARPES) in combination with newly developed schemes for the transient direct excitation of electrons and photocurrents. Ultrashort mid infrared (MIR) and THz pump pulses are combined with femtosecond ultraviolet probe pulses for photoemission. Fundamentally new results could be obtained on three different topics.

Two-photon photoemission experiments with visible pump pulses unambiguously show, for the first time, the existence of the linear dispersing Dirac cone in the bulk band gap of Sb_2Te_3 and $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$. Both materials are intrinsically p-doped, such that the Dirac cone was previously not accessible by conventional ARPES. Time-resolved experiments reveal that the decay of indirectly excited electrons in the Dirac-cone is dominated by scattering with electrons in the partially unoccupied valence band, as well as by transport into the bulk. Electron-phonon scattering is shown to play only a minor role.

Mid infrared (MIR) pump pulses with photon energies in the range of the bulk band gap enable a direct optical transition from the occupied into the unoccupied part of the Dirac cone in Sb_2Te_3 . This new excitation mechanism allows for the direct generation of an asymmetric electron distribution in momentum space. The time-resolved investigation of the redistribution of this asymmetry makes it possible to gain quantitative information about elastic momentum scattering, which is the limiting mechanism for charge transport. Elastic scattering times as long as 2.5 ps confirm theoretical predictions about considerable restrictions on momentum scattering in the surface state, due to its special spin texture. The results further show that the asymmetry depends on the crystal orientation and can be controlled with circularly polarized light of opposite helicity.

Finally, a novel time- and angle-resolved photoemission experiment based on excitation in the THz range was developed and successfully demonstrated. For this purpose, the apparatus for photoelectron spectroscopy of our group in Marburg was combined with a laser setup of the group of Rubert Huber at the university of Regensburg which can produce intensive THz pump pulses. Femtosecond UV probe pulses allow for time-resolved photoemission with subcycle resolution. The new experiment makes it possible to drive electron currents in the topological surface state of Bi_2Te_3 with an electric field strength of up to 2,8 kV/cm at frequencies around 1 THz. The acceleration of the electrons in the sample was directly observed in momentum space with ARPES. The displacement of the Fermi circle of almost 10% of the Fermi wavevector leads to a spin-polarized current in the surface state with a current density of up to 2 A/cm.

An experimentally challenging aspect of the THz excitation originates from the interaction of the electric field of the pump pulses with the photoemitted electrons in the vacuum, which can no longer be neglected as in previous tr-ARPES experiments. Methods were developed to correct the photoelectron spectra from additional shifts in kinetic energy and parallel momentum that arise from the acceleration and deceleration of the photoelectrons. At the same time, this so-called energy and momentum streaking makes it possible to sample the electric field at the surface *in situ* with high precision.

The precise knowledge of the electric field transient makes it possible to extract characteristic times for elastic and inelastic scattering for the experiment. For this purpose, the time-resolved observation of the electron distribution in the surface state is compared with semi-classical calculations based on the Boltzmann-equation. In Bi_2Te_3 , scattering times of 1 ps or higher could be derived. Thus, the revealed scattering times in this genuine time-resolved transport measurement are at least two orders of magnitude longer than in conventional materials. Combined with the inertia-free acceleration in the quasi-relativistic Dirac cone, this results in a ballistic mean free path of several hundred nanometers. Together, these results considerably improve our understanding of electron dynamics and strong-field interaction in novel solids. At the same time, they open the way towards all-coherent lightwave-driven electronic devices.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	I
Abstract	V
1. Einleitung	1
2. Grundlagen	7
2.1 Topologische Isolatoren	7
2.1.1 Theoretische Grundlagen	9
2.1.2 Materialsysteme	12
2.2 Zeitaufgelöste Photoemission	16
2.2.1 Winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (ARPES) . . .	16
2.2.2 Zweiphotonen-Photoemission (2PPE)	19
2.2.3 Photoemissionsexperimente mit THz-Anregung	23
2.3 Elektrische Ströme im Impulsraum	25
2.3.1 Beschleunigung von Bloch-Elektronen	25
2.3.2 Boltzmann-Gleichung	27
2.4 Photoströme in topologischen Isolatoren	31
2.4.1 Prozesse zur Erzeugung von Photoströmen	32
2.4.2 Experimentelle Beobachtung von Photoströmen	34
3. Experiment	37
3.1 Ultrahochvakuumkammer ZAPES I	37
3.2 Lasersystem zur Anregung mit durchstimmbaren Photonenenergien .	40
3.3 Lasersystem zur Erzeugung von THz-Impulsen	42
3.4 Probenpräparation und Charakterisierung	44
4. Ladungsträgerdynamik in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$	51
4.1 Anregung mit sichtbaren Impulsen	52
4.1.1 Identifikation unbesetzter Zustände in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$.	52
4.1.2 Elektronendynamik in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ nach Anregung mit sichtbaren Laserimpulsen	55
4.2 Anregung mit durchstimmbaren Impulsen	59

4.2.1	Anregungsdynamik im Dirac-Kegel	60
4.2.2	Direkte optische Anregung in Dirac-Kegel	62
4.3	Zusammenfassung	65
5.	Erzeugung und Kontrolle asymmetrischer Besetzungen in Sb_2Te_3	67
5.1	Elektronendynamik asymmetrischer Besetzungen in Sb_2Te_3	67
5.2	Azimutabhängigkeit der asymmetrischen Besetzung	75
5.3	Polarisationsabhängigkeit der Anregung im Dirac-Kegel	81
5.3.1	Kontrolle der Asymmetrie mit zirkularer Polarisation	81
5.3.2	Kontrolle der Asymmetrie mit linearer Polarisation	89
5.4	Zusammenfassung und Diskussion: Optische Anregung von Photoströmen in Sb_2Te_3	94
6.	Photoströme in Bi_2Te_3 nach Anregung mit THz-Impulsen	97
6.1	Photoelektronenstreaking mit THz-Impulsen	99
6.1.1	Bestimmung des Elektronenstreakings aus Photoemissionsdaten	100
6.1.2	Rekonstruktion p-polarisierter Felder	102
6.1.3	Rekonstruktion s-polarisierter Felder	103
6.1.4	Quantitative Bestimmung p-polarisierter Felder	106
6.1.5	Interpolation des elektrischen Feldes und Simulation der Elektronenenergie	108
6.2	Intrabandbeschleunigung von Dirac-Elektronen	111
6.2.1	Erzeugung von Photoströmen mittels Intrabandbeschleunigung	112
6.2.2	Quantitative Bestimmung s-polarisierter Felder	118
6.2.3	Simulation der Boltzmann-Gleichung und Bestimmung der Streuzeiten	121
6.3	Phononenanregung in Bi_2Te_3	132
6.4	Zusammenfassung und Ausblick: Anwendungen im Rahmen der Lichtwellenelektronik	134
A.	Photoemissionsexperiment ZAPES III	139
B.	Berechnung des Photostroms nach Intrabandbeschleunigung . . .	147
C.	Numerische Integration der Boltzmann-Gleichung	151
	Literaturverzeichnis	153
	Publikationen und Konferenzbeiträge	175
	Wissenschaftlicher Werdegang	177
	Danksagung	179

Kapitel 1

Einleitung

Selbst vielen Physikern ist wahrscheinlich erst mit der Vergabe des Physik-Nobelpreises im Jahr 2016 an David J. Thouless, F. Duncan M. Haldane und J. Michael Kosterlitz voll bewusst geworden, welche Bedeutung die Übertragung von Konzepten der Topologie aus der Mathematik auf die Physik für das Verständnis vieler ungewöhnlicher Eigenschaften niedrigdimensionaler Systeme besitzt. Dies ist zunächst überraschend, da Thouless und Kosterlitz auf der Grundlage dieser Konzepte schon im Jahr 1972 erklären konnten, warum in zweidimensionalen Systemen Phasenübergänge, wie spontane Magnetisierung oder Superfluidität, auftreten, obwohl es dort bei endlicher Temperatur keine Symmetriebrechung gibt [1]. Sie konnten darüber hinaus bereits 1982, zwei Jahre nach der Entdeckung des Quanten-Hall-Effektes (QHE) durch Klaus von Klitzing [2], erklären, warum ein zweidimensionales (2D) Elektronensystem in einem starken Magnetfeld nur von Naturkonstanten abhängige, exakt quantisierte Werte der Leitfähigkeit besitzt, und zwar trotz unvermeidlicher Verunreinigungen und unabhängig von Details der experimentellen Geometrie [3].

Beim QHE werden die Elektronen im Inneren der Probe durch ein externes Magnetfeld lokalisiert. Das System verhält sich im Volumen wie ein Isolator und besitzt überraschenderweise am Rand der Probe metallische Zustände. Der Ansatz von Thouless und Kosterlitz für die Beschreibung des QHE bestand nun darin, jede Änderung des Füllfaktors der Landauniveaus bei Erhöhung des Magnetfeldes mit einem topologischen Phasenübergang zu identifizierten. Dieser Phasenübergang führt zu einer sprunghaften Änderung der Anzahl der elektronischen Zustände am Rand der Probe. Die Robustheit des Wertes der Leitfähigkeit beruht somit darauf, dass die Topologie und damit die Anzahl der Randzustände eine globale, intrinsische Eigenschaft des 2D-Elektronengases im Magnetfeld darstellt. Infolgedessen kann die Leitfähigkeit am Rand der Probe nicht auf einfache Weise, z. B. durch Verunreinigungen, beeinflusst werden. Sie ist „topologisch geschützt“.

Ein analoges Prinzip gilt auch für 2D topologische Isolatoren. Hier kann in bestimmten kristallinen Materialsystemen mit starker Spin-Bahn-Kopplung der Bahndrehimpuls der Elektronen die Rolle des externen Magnetfeldes übernehmen und der QHE wird zu einer intrinsischen Eigenschaft der Bandstruktur des Festkörpers. Analog zum Haldane-Modell für ein hexagonales Gitter in einem äußeren Magnetfeld [4] bil-

den sich Randzustände aus, die das Valenzband und das Leitungsband des Festkörpers miteinander verbinden [5]. In diesen Systemen kommt als ganz neuer Aspekt hinzu, dass es für jede der beiden Ausrichtungen des Elektronenspins einen eigenen Randzustand gibt, der zum Ladungstransport in jeweils entgegengesetzter Richtung beiträgt. Diese Kopplung von Spin und linearem Impuls der Elektronen hat ungewöhnliche Konsequenzen für die Transporteigenschaften. Die Streuung zwischen Elektronenzuständen mit entgegengesetztem Spin ist nicht möglich, solange die Invarianz gegenüber der Zeitumkehr nicht, beispielsweise durch ein externes Magnetfeld, verletzt wird. Dies ermöglicht die Erzeugung eines völlig verlustfreien, vollständig spinpolarisierten elektrischen Stroms in den Randzuständen. Zudem garantiert auch hier der Unterschied in der Topologie innerhalb und außerhalb der Probe die Existenz dieser Zustände.

In dreidimensionalen (3D) topologischen Isolatoren bilden die Randzustände 2D topologisch geschützte Oberflächenbänder mit linearer Dispersion. Ein solcher linearer Zusammenhang zwischen Energie und Impuls ist charakteristisch für hochrelativistische Teilchen, die sich nahezu mit Lichtgeschwindigkeit bewegen und die durch die Dirac-Gleichung beschrieben werden. Die kegelförmigen Oberflächenbänder werden deshalb „Dirac-Kegel“ genannt (Abbildung 1.1). Für den Ladungstransport hat die lineare Dispersion die weitere ungewöhnliche Eigenschaft zur Folge, dass sich alle Leitungselektronen, unabhängig von der Beschleunigung, mit der gleichen Gruppengeschwindigkeit, der sogenannten Fermigeschwindigkeit, bewegen. Diese ist typischerweise um zwei bis drei Größenordnungen kleiner als die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.

Der erste Nachweis der Existenz der Dirac-artigen Oberflächenbänder in einem 3D topologischen Isolator gelang 2009 in der Verbindung $\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x$ mittels winkelaufgelöster Photoelektronenspektroskopie (ARPES) [6]. ARPES kann die Dispersion besetzter Oberflächenbänder direkt bestimmen. Auf diese Weise konnten in kurzer Zeit die topologischen Oberflächenzustände einer ganzen Reihe weiterer, insbesondere Bi-haltiger Verbindungen, wie Bi_2Se_3 und Bi_2Te_3 , nachgewiesen werden [7, 8].

Neben Bi_2Se_3 und Bi_2Te_3 gehört Sb_2Te_3 zu den wichtigsten Prototypen von 3D topologischen Isolatoren. Im Idealfall sind die topologischen Oberflächenbänder dieser Materialien im Grundzustand genau bis zum Schnittpunkt des Dirac-Kegels, dem Dirac-Punkt, besetzt. Aufgrund unvermeidbarer Fehlstellen im Kristallgitter sind die Materialien typischerweise aber intrinsisch dotiert. Dies hat zur Folge, dass praktisch der gesamte Dirac-Kegel der Bi-haltigen Verbindungen vollständig besetzt und für ARPES zugänglich ist. Im Gegensatz dazu ist er in Sb_2Te_3 nahezu vollständig unbesetzt, sodass es vor der vorliegenden Arbeit nur indirekte Hinweise auf die Existenz eines topologischen Dirac-Kegels in Sb_2Te_3 gab [9–11].

Ein wichtiges erstes Ergebnis der hier vorgestellten Experimente besteht darin, die Existenz eines Dirac-Kegels in Sb_2Te_3 und dem damit verwandten Material $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ durch winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie unzweifelhaft nachgewiesen zu haben [12]. Dabei wurde ausgenutzt, dass sich die Beschränkung der üblichen Photo-

elektronenspektroskopie auf besetzte Zustände durch den Einsatz der Zweiphotonen-Photoemission (2PPE) überwinden lässt.

Die winkelaufgelöste 2PPE stellt zunächst eine Erweiterung von ARPES auf anfangs unbesetzte elektronische Zustände dar. Die Absorption eines ersten Photons eines Lichtimpulses bevölkert vormals unbesetzte Zustände und die Absorption eines zweiten Photons eines weiteren Lichtimpulses photoemittiert das angeregte Elektron (Abbildung 1.1). Dessen kinetische Energie und dessen Emissionswinkel wird bei ARPES gemessen und daraus seine Bindungsenergie und sein Parallelimpuls im Festkörper bestimmt. Durch geeignete Wahl der Photonenenergien der beiden Lichtimpulse sind dabei elektronische Zustände im gesamten Energiebereich zwischen der Fermienergie und der Vakuumenergie zugänglich. Die Verwendung ultrakurzer Lichtimpulse mit Impulsdauern von weniger als 100 Femtosekunden erlaubt es darüber hinaus, die Dynamik der Elektronen durch Anrege-Abfrage-Techniken (englisch *pump-probe*) direkt in der Zeitdomäne zu untersuchen.

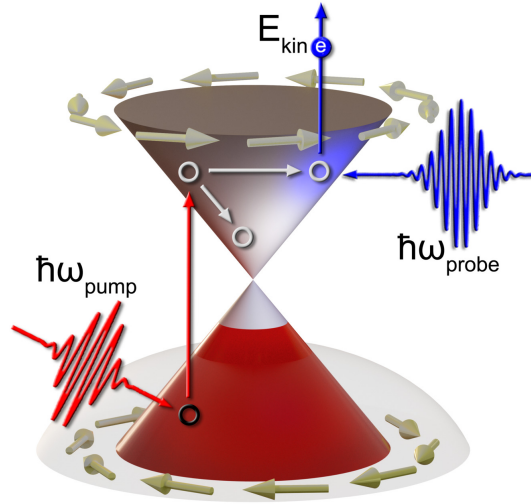


Abb. 1.1: Schema der zeitaufgelösten 2PPE an einem topologischen Isolator mit Streuung der angeregten Elektronen im teilweise gefüllten, spinpolarisierten Dirac-Kegel.

Sowohl für Sb_2Te_3 , als auch für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$, konnte gezeigt werden (Kapitel 4), dass die Lebensdauer der angeregten Elektronen im Dirac-Kegel im Pikosekundenbereich liegt. Sie ist vor allem durch Streuung mit Elektronen im teilweise unbesetzten Volumen-Valenzband des p-dotierten Kristalls begrenzt. Die Elektron-Phonon-Streuung ist dagegen von untergeordneter Bedeutung.

Die intrinsische Dotierung sowie die vergleichsweise kleine Volumen-Bandlücke von topologischen Isolatoren stellen bisher die größten Hürden nicht nur für mögliche Anwendungen dar. Auch der Nachweis der ungewöhnlichen Transporteigenschaften in topologischen Oberflächenzuständen wird dadurch extrem schwierig. Die prototypi-

schen Materialien Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 und Sb_2Te_3 besitzen mit etwa 300 meV die größten Bandlücken aller bisher bekannten 3D topologischen Isolatoren. Damit zählen diese Materialien tatsächlich aber eher zu den Halbleitern mit kleiner Bandlücke als zu den eigentlichen Isolatoren. Dies hatte zur Folge, dass übliche Transportmessungen bisher vollständig durch die intrinsische Leitfähigkeit der Volumenkristalle dominiert wurden.

Die hohe Oberflächenempfindlichkeit und die spektroskopischen Möglichkeiten der 2PPE machen es dagegen möglich, die Elektronendynamik mit der zeit- und winkel aufgelösten 2PPE selektiv in den topologischen Oberflächenbändern zu verfolgen. Die direkte Untersuchung elektronischer Transportprozesse setzt dabei die Anregung einer asymmetrischen Verteilung der Elektronen bezüglich einer vorgegebenen Richtung entlang der Oberfläche voraus. Die zeitliche Abnahme der Asymmetrie und des daraus resultierenden Stroms kann dann prinzipiell mit der 2PPE direkt im Impulsraum beobachtet werden [13].

Nicht nur unsere eigenen ersten Experimente an topologischen Isolatoren, auch alle anderen 2PPE-Experimente verwendeten Laserimpulse im nahen Infrarot oder sichtbaren Spektralbereich für die Anregung der Elektronen [12, 14–20]. Damit werden hauptsächlich elektronische Volumenbänder mit Energien weit oberhalb des relevanten topologischen Oberflächenzustands optisch angeregt. Dieser wird erst danach, durch viele sukzessive Zerfallsprozesse, in indirekter Weise besetzt. Die Erzeugung einer asymmetrischen Verteilung im relevanten Oberflächenband ist so praktisch unmöglich. Selbst wenn die ursprüngliche Anregung in höher liegenden Bändern zu einer ungleichen Verteilung im Impulsraum führt, wird diese durch die vielen Streuprozesse wieder symmetrisiert.

Das zweite Hauptergebnis dieser Arbeit beruht darauf, dass durch die Verwendung von Laserimpulsen im mittleren Infrarotbereich erstmals eine direkte optische Anregung eines topologischen Oberflächenbands erreicht wurde [21]. In Sb_2Te_3 konnte dabei demonstriert werden, dass Photonenenergien um 300 meV resonante optische Übergänge zwischen dem besetzten und unbesetzten Teil des Dirac-Kegels induzieren. Überraschenderweise führen dabei (Kapitel 4) linear polarisierte Laserimpulse zu einer stark asymmetrischen Verteilung im Impulsraum, welche über die Orientierung mit der dreizähligen Symmetrie der Probenoberfläche moduliert ist [22]. Für bestimmte Orientierungen der Probe ist es ferner möglich, sowohl das Vorzeichen, als auch die Stärke der Asymmetrie mit links und rechts zirkular polarisiertem Infrarotlicht zu kontrollieren (Kapitel 5) [23].

Ausgehend von der asymmetrischen Elektronenverteilung konnte die für den Transport wichtige Umverteilung im Impulsraum, die elastische Streuung der Elektronen, direkt mit der 2PPE beobachtet und analysiert werden. Die elastische Streuzeit ist mit 2,5 ps um mehr als zwei Größenordnungen länger als auf wohlpräparierten Metalloberflächen, und zwar selbst für elektronische Zustände die stark vom Substrat entkoppelt sind [13, 24]. Da sich die Elektronen mit einer Fermigeschwindigkeit von

mehr als 300 nm/ps entlang der Oberfläche bewegen, entspricht diese Streuzeit einer mittleren freien Weglänge von fast 1 μm und ist damit auch wesentlich größer als der typische Abstand von Defekten auf der Oberfläche. Dieses Resultat bestätigt die theoretische Vorhersage, dass die spezielle Spinstruktur des Dirac-Kegels tatsächlich mit einer starken Einschränkung der Impulsstreuung verbunden ist.

Obwohl durch die Verwendung von Lichtimpulsen im mittleren Infrarotbereich die Anregung einer asymmetrischen Besetzung selektiv im Dirac-Kegel erfolgt, entspricht die damit erzeugte Elektronenverteilung mit Energien von bis zu 150 meV oberhalb der Fermienergie immer noch einem deutlichen Nichtgleichgewicht. Die Situation unterscheidet sich damit noch stark vom normalen Stromtransport, wo Elektronen durch elektrische Felder nur leicht ausgelenkt werden und in ihrem Band in der Nähe der Fermienergie verbleiben. Die Ergebnisse dieser 2PPE-Messungen lassen sich daher nur eingeschränkt auf die Transporteigenschaften übertragen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte diese Einschränkung in enger Kooperation mit der Gruppe von Rupert Huber an der Universität Regensburg nun durch ein neuartiges zeit- und winkelaufgelöstes Photoemissionsexperiment überwunden werden [25]. Anstelle einer optischen Anregung wird das vergleichsweise langsam variierende elektrische Feld eines intensiven THz-Impulses zur Beschleunigung der Elektronen im topologischen Oberflächenband von Bi_2Te_3 verwendet. In Kombination mit einem kurzen ultravioletten Laserimpuls zur winkelaufgelösten Photoemission kann dadurch mit einer Subzyklen-Zeitauflösung beobachtet werden, wie die Elektronenverteilung im Impulsraum dem momentanen elektrischen Feld zunächst folgt und sukzessive durch den Einfluss der Streuprozesse umverteilt wird. Wiederum liegen die Elektronen-Streuzeiten in der Größenordnung von 1 ps. Damit wurde gezeigt, dass auch in einer echten zeitaufgelösten Transportmessung die Streuzeit für den ballistischen Elektronentransport in einem topologisch geschützten Oberflächenband um mehr als zwei Größenordnungen länger ist als in konventionellen Materialien.

Die Elektronen im Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 und vermutlich auch von anderen topologischen Isolatoren können also vom elektrischen Feld einer THz-Lichtwelle nicht nur stark beschleunigt, sondern auch viele 100 nm ausgelenkt werden. Die mittlere freie Weglänge übertrifft die typischen Gatebreiten heutiger Transistoren deutlich. Diese Resultate können somit in Zukunft die Realisierung von elektronischen Bauteilen ermöglichen, welche auf einem kohärenten Elektronentransfer bei Taktraten im THz-Bereich basieren.

Kapitel 2

Grundlagen

Das folgende Kapitel präsentiert die Grundlagen der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente. Im ersten Abschnitt werden die theoretischen Grundlagen zu topologischen Isolatoren und anschließend die untersuchten Materialsysteme selbst vorgestellt. Nach einer Einführung in die winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (engl.: *angle-resolved photoemission spectroscopy*, *ARPES*) wird detailliert auf die zeitaufgelöste Photoemission im Allgemeinen und auf die Zweiphotonen-Photoemission (2PPE, engl.: *two-photon photoemission*) im Besonderen eingegangen. Auf einen Abschnitt über die allgemeine Beschreibung von elektrischen Strömen in Festkörpern folgt eine Einführung in die Boltzmann-Gleichung im Hinblick auf die Beschreibung transienter Elektronenverteilungen im Oberflächenband eines topologischen Isolators. Der letzte Abschnitt gibt einen Überblick über die Möglichkeiten der Erzeugung von Photoströmen in topologischen Isolatoren und über erste experimentelle Untersuchungen.

2.1 Topologische Isolatoren

Topologische Isolatoren sind eine Klasse von Materialien mit besonderen Eigenschaften im Hinblick auf ihre elektrische Leitfähigkeit. Sie zeichnen sich durch die Bandlücke eines Isolators im Volumen und elektrisch leitende, metallische Zustände an der Oberfläche aus. Die Oberflächenzustände besitzen eine lineare Dispersion und treten in dreidimensionalen topologischen Isolatoren in Form eines Dirac-Kegels (engl.: *Dirac-Cone*) am $\bar{\Gamma}$ -Punkt auf. Da die Existenz der Zustände durch die Topologie der elektronischen Bandstruktur gesichert ist, sind die Zustände unempfindlich gegenüber Verunreinigung und Adsorbaten an der Oberfläche, und man spricht von *topologisch geschützten* Zuständen. Im topologischen Oberflächenzustand ist die Spinartung aufgehoben und der Spin eines Elektrons ist fest an den Parallelimpuls gekoppelt (engl.: *spin momentum locking*), die Rückstreuung eines Elektrons von $+\vec{k}$ nach $-\vec{k}$ benötigt daher einen Spinflip und ist in nicht-magnetischen Systemen verboten. Man erwartet deshalb für Elektronen im Dirac-Kegel eines topologischen Isolators lange elastische Streuzeiten und außergewöhnliche Transporteigenschaften.

In der kurzen Zeit seit den ersten theoretischen Konzepten in den Jahren 2005 und 2006 [5, 26], über die erste Vorhersage und experimentelle Beobachtung eines topologisch geschützten Zustands in einem echten Material 2007 [7, 27–31], bis zur Würdigung von David J. Thouless, F. Duncan M. Haldane und J. Michael Kosterlitz mit dem Nobelpreis für Physik 2016 für “theoretische Entdeckungen topologischer Phasenübergänge und topologischer Materiephasen“, hat sich das gesamte Forschungsfeld der topologischen Isolatoren und das Verständnis dieser Materialien rasant entwickelt.

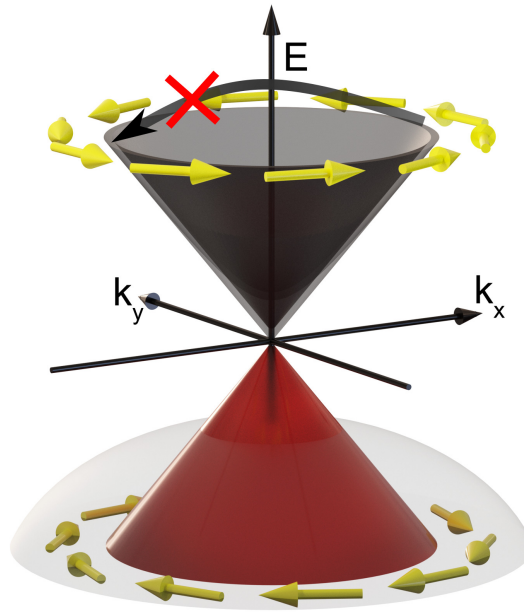


Abb. 2.1: Schema des topologisch geschützten Oberflächenzustand in einem dreidimensionalen topologischen Isolator. Der Dirac-Kegel ist bis zum Dirac-Punkt besetzt und im unteren Bereich in das Valenzband (hellgraue Halbkugel) eingebettet. Aufgrund der Spin-Textur (gelbe Pfeile) ist die direkte Rückstreuung verboten.

Im Verlauf dieses Abschnittes soll auf die theoretischen Grundlagen der Oberflächenzustände topologischer Isolatoren eingegangen werden. Die Eigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten Materialien Sb_2Te_3 , $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ und Bi_2Te_3 werden anschließend vorgestellt. Für eine vollständigere Abhandlung der Theorie topologischer Isolatoren und einen Ausblick auf die im Zusammenhang mit topologischen Isolatoren erwarteten exotischen Zustände von Materie, wie topologische Supraleitung, Quanten-Hall-Effekt und Majorana Fermionen, sei auf [32–34] verwiesen.

2.1.1 Theoretische Grundlagen

Die Oberflächenzustände topologischer Isolatoren gehören zu einer Klasse von Zuständen, die nicht auf Grundlage eines Symmetriebruches, wie zum Beispiel der Shockley Oberflächenzustand [35], sondern durch den Wechsel eines topologischen Ordnungsparameters (engl.: *topological order*) an der Grenzfläche entstehen [1]. Mit Hilfe dieses Konzepts konnte der im Jahre 1980 erstmalig beobachtete Quanten-Hall-Effekt (QHE) [2] bereits nach kurzer Zeit erklärt werden [3]. Beim QHE beobachtet man in einem zweidimensionalen Elektronensystem in Anwesenheit starker Magnetfelder eine Quantisierung des Widerstands und dissipationslosen Stromtransport in elektronischen Zuständen am Rand der Probe. Anschaulich werden die Elektronen, wie in Abbildung 2.2 (b) skizziert, durch das Magnetfeld auf Zyklotronbahnen fester Drehrichtung gezwungen. Es bilden sich Landauniveaus aus und in der Bandstruktur sind die besetzten und unbesetzten Zustände durch eine Bandlücke getrennt, analog dem Valenz- und Leitungsband eines Isolators (siehe Abbildung 2.2 (a)). An der Kante des Materials können sich die Elektronen auf sogenannten *skipping orbits* („hüpfenden“ Bahnen) bewegen, es entsteht ein leitender Zustand in der Bandlücke und es kann ein Ladungstransfer entlang der Kante stattfinden. Da die Elektronen sich innerhalb des Zustands nur in eine Richtung bewegen können, ist der Ladungstransport nicht durch Rückstreuung an Störstellen unterbrochen und es stellt sich die im QHE beobachtete quantisierte, nur von Naturkonstanten abhängige Leitfähigkeit in starken magnetischen Feldern ein.

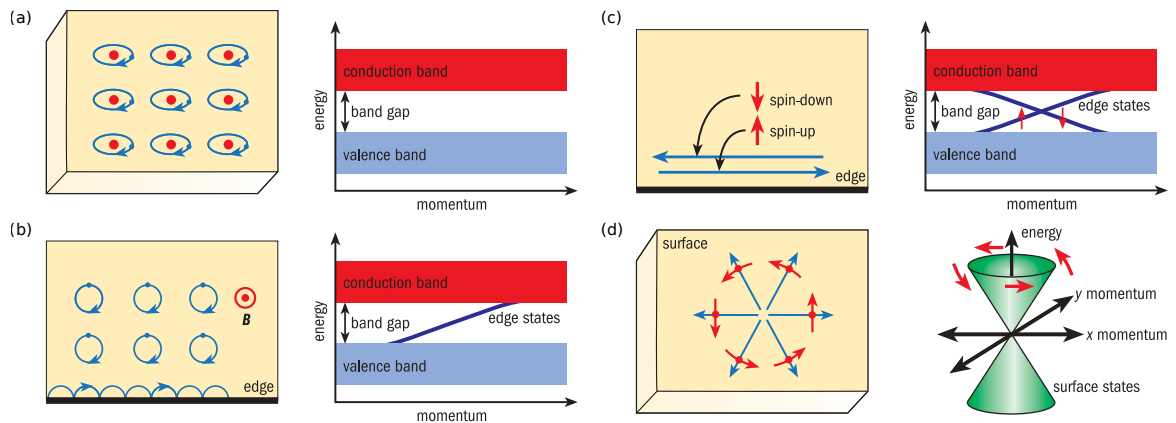


Abb. 2.2: (a) In einem Isolator sind aufgrund der Lokalisation der Elektronen das Valenz- und Leitungsband durch die Bandlücke voneinander getrennt. (b) Im Quanten-Hall-Effekt bewegen sich die Elektronen im Magnetfeld \vec{B} auf Kreisbahnen fester Drehrichtung. Am Rand bildet sich ein leitender Zustand aus. (c) Beim Quanten-Spin-Hall-Effekt oder in einem zweidimensionalen topologischen Isolator existieren zwei in unterschiedliche Richtungen propagierende Zustände mit entgegengesetztem Spin. (d) Im Oberflächenband eines dreidimensionalen topologischen Isolators können sich die Elektronen in beliebige Richtungen bewegen. Der Spin der Elektronen ist fest an die Richtung gekoppelt. Die Dispersion des Oberflächenzustands entspricht einem Dirac-Kegel. (Abbildung aus [36])

Im 2005 erstmalig theoretisch vorhergesagten Quanten-Spin-Hall-Effekt (QSHE) [5] wird die Funktion des äußeren magnetischen Feldes durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Material übernommen. Der QSHE ist durch zwei am Rand des Materials lokalisierte, spingefilterte Zustände innerhalb der Bandlücke gekennzeichnet (siehe Abbildung 2.2 (c)). In diesen Zuständen können sich Elektronen entgegengesetzten Spins in entgegengesetzte Richtungen bewegen. Aufgrund des invertierten Spins können Elektronen nicht elastisch zwischen den Zuständen gestreut werden. Es bildet sich somit dissipationslose, spinpolarisierte Hin- und Rückkanäle an den Kanten des Materials aus und QSHE Systeme besitzen außergewöhnliche Transporteigenschaften. Da ohne ein externes Magnetfeld die Zeit-Inversions-Symmetrie erhalten ist, bilden die beiden Randzustände ein Kramer-Paar. Das Kramer-Theorem garantiert, dass die Zustände eines Kramer-Paares an den Zeit-Inversions invarianten Punkten im Impulsraum (engl.: *time-reversal invariant momenta*, *TRIM*), zum Beispiel an $\bar{\Gamma}$, entartet sind. Für eine gerade Anzahl von Kramer-Paaren an einer Kante können die Zustände wie in 2.3 (a) auf eine Weise entartet sein, das durch Verschiebung oder Störung der Zustände eine Bandlücke entstehen kann. Für eine ungerade Anzahl muss jedoch immer mindestens ein Kramer-Paar in der Bandlücke existieren. Die Bandstruktur kann in diesem Fall ohne das Schließen der Bandlücke nicht in die Bandstruktur eines Isolators überführt werden und der leitende Zustand in der Bandlücke ist *topologisch geschützt*. Materialien mit QSHE werden daher auch als zweidimensionale topologische Isolatoren bezeichnet.

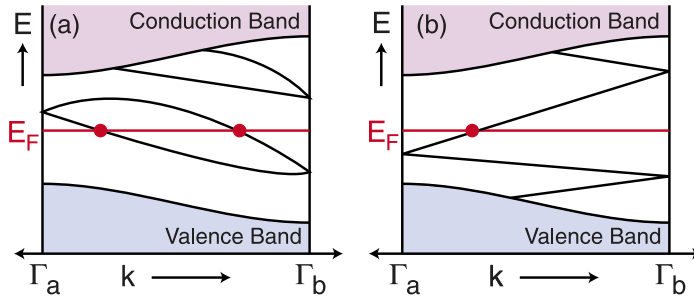


Abb. 2.3: Schematische Bandstruktur für Kramer-Paare zwischen zwei Zeit-Inversions invarianten Punkten Γ_a und Γ_b . Die Anzahl der die Fermienergie E_F kreuzenden Zustände ist entweder (a) gerade oder (b) ungerade und durch die Parität der Zustände bei Γ_a und Γ_b bestimmt. Die ungerade Anzahl von Kreuzungspunkten in (b) führt zu topologisch geschützten, leitenden Oberflächenzuständen. (Abbildung aus [32])

Eine Erweiterung der zweidimensionalen topologischen Isolatoren auf drei Dimensionen überführt die eindimensionalen Randkanäle in einen zweidimensionalen Dirac-Kegel an der Oberfläche des Materials. Der Elektronenspin ist nicht mehr auf zwei Ausrichtungen festgelegt, sondern variiert kontinuierlich wie in Abbildung 2.2 (d) skizziert. Der Elektronenspin ist weiterhin fest und eindeutig an den Impuls des Elektrons gekoppelt. Da jedoch nur direkte Rückstreuung, also eine Impulsänderung von $+\vec{k}$ nach $-\vec{k}$ mit einem Spinflip verbunden und damit verboten ist, ist die Impulsstreu-

ung in zwei Dimensionen nicht mehr vollständig unterdrückt. Die Oberflächenzustände sind des Weiteren aufgrund des topologischen Schutzes unempfindlich gegenüber Adsorbaten und (nicht-magnetischen) Defekten an der Oberfläche.

Die physikalische Ursache des Auftretens der topologisch geschützten Zustände in zwei- und dreidimensionalen topologischen Isolatoren ist eine Bandinversion aufgrund der starken Spin-Bahn-Wechselwirkung (engl.: *spin orbit coupling, SOC*). Findet die Inversion, wie in Abbildung 2.4 dargestellt, zwischen Zuständen unterschiedlicher Parität statt, spricht man von topologisch nicht-trivialen Zuständen und das Material ist ein topologischer Isolator. Der Unterschied beider Systeme zueinander lässt sich in der topologischen Invariante \mathbb{Z}_2 [5] ausdrücken. Bei Gültigkeit der Zeit-Inversions-Symmetrie ist \mathbb{Z}_2 eine Erhaltungsgröße, ein topologischer Isolator kann daher nicht durch eine stetige Veränderung der Bandstruktur in einen topologisch trivialen Isolator überführt werden, ohne die Bandlücke zu schließen.

An der Grenzfläche zwischen einem topologischen Isolator und einem trivialen Isolator (zum Beispiel dem Vakuum) mit einem Wechsel von \mathbb{Z}_2 muss daher ein durch die Topologie geschützter Zustand existieren, der die Bandlücke schließt. Dieser Zustand ist der in einem dreidimensionalen topologischen Isolator beobachtete Dirac-Kegel am $\bar{\Gamma}$ -Punkt.

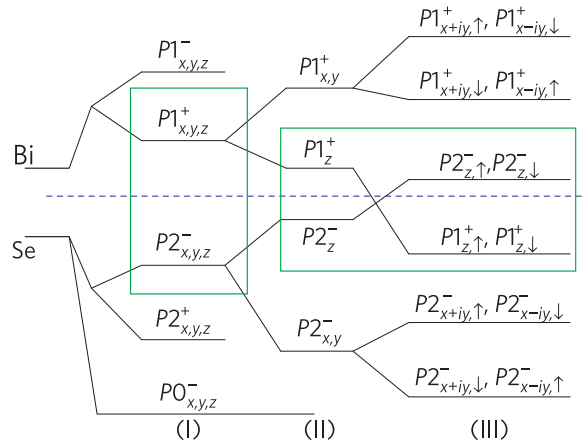


Abb. 2.4: Schematischer Verlauf der Lage der $p_{x,y,z}$ Orbitale im Valenzband von Bi_2Se_3 am Γ -Punkt. Die drei Bereiche entsprechen dem sequentiellen Hinzufügen der Beiträge der chemischen Bindung (I), des Kristallfeldes (II) und der Spin-Bahn-Wechselwirkung (SOC) (III). Aufgrund der SOC kommt es zu einer Inversion der Zustände an der Fermienergie (blaue gestrichelte Linie). (Abbildung aus [37])

2.1.2 Materialsysteme

Die erste experimentelle Beobachtung eines zweidimensionalen topologischen Isolators gelang durch Transportexperimente an in (Hg,Cd)Te eingebetteten HgTe Quantenfilmen [29] kurz nachdem dies theoretisch vorhergesagt wurde [26]. Im ersten dreidimensionalen topologischen Isolator $\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$ erfolgte ebenfalls nur wenige Zeit nach der theoretischen Vorhersage [27] mit Hilfe winkelaufgelöster Photoemission ein erster direkter Nachweis der Existenz topologisch geschützter Oberflächenzustände [30].

Die Existenz der topologischen Phase in $\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$ hängt empfindlich vom Grad der Dotierung ab, das Material zeigt außerdem eine komplexe Oberflächenrekonstruktion und eine Bandlücke kleiner 20 meV [38]. Die Forschung an dreidimensionalen topologischen Isolatoren verlagerte sich aus diesen Gründen nach theoretischer Vorhersage [37] und erster experimenteller Beobachtung [7, 8, 39] auf die sogenannte zweite Generation topologischer Isolatoren, insbesondere auf Bi_2Se_3 , Sb_2Te_3 und Bi_2Te_3 . Diese Materialien besitzen einen topologischen Zustand sowohl in ganzzahligem stöchiometrischen Verhältnis als auch nach Dotierung mit Fremdatomen und besitzen Bandlücken im Bereich um 100...300 meV. Die Materialien können im Vergleich zu $\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$ in höherer Qualität und mit weniger Defekten hergestellt werden. Durch Dotierung ist zusätzlich eine Kontrolle der Lage der Fermienergie möglich, die Materialien können sowohl n- als auch p-dotiert hergestellt werden [8, 14, 40].

In stöchiometrisch gewachsenen Bi_2Se_3 und Bi_2Te_3 Kristallen zeigt sich aufgrund geladener Se/Te Fehlstellen [41, 42] eine intrinsische n-Dotierung, das Fermi-niveau liegt oberhalb des Dirac-Punktes und im Fall von Bi_2Se_3 typischerweise im Leitungsband. Da damit der Dirac-Kegel in beiden Materialien besetzt ist, eignen sich Bi_2Se_3 und Bi_2Te_3 ideal für Untersuchungen mittels Einphotonen-Photoemission (1PPE). Insbesondere an Bi_2Se_3 , für das der Dirac-Kegel vollständig in der Volumenbandlücke liegt, wurden mit Hilfe der 1PPE eine Vielzahl von Untersuchungen zu den allgemeinen Eigenschaften dreidimensionaler topologischer Isolatoren durchgeführt [7, 37, 40, 43–51]. Mit Hilfe spinaufgelöster Photoemission konnte insbesondere auch die Spinpolarisation im Dirac-Kegel nachgewiesen werden [11, 49, 52–56].

In stöchiometrischem Sb_2Te_3 liegt aufgrund von Sb-Substituierung an Te-Stellen [57] eine intrinsische p-Dotierung vor, das Fermi-niveau liegt ≈ 150 meV unterhalb des Dirac-Punktes und ist somit nicht mit 1PPE zugänglich. Erst im Rahmen dieser Arbeit konnte durch die Verwendung der zeit- und winkelaufgelösten Zweiphotonen-Photoemission der linear dispergierende Oberflächenzustand in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ beobachtet werden [12]. In jüngster Zeit konzentriert sich die Forschung verstärkt auf ternäre Materialien [19, 58–61]. Insbesondere $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ zeichnet sich dabei durch eine über die Stöchiometrie besonders genau einstellbare Lage der Fermienergie aus. Somit ist es möglich, topologische Isolatoren mit einem Fermi-niveau direkt im Dirac-Punkt zu untersuchen [62–64], die sich durch eine besonders langlebige Elektronendynamik auszeichnen.

Die drei in dieser Arbeit untersuchten Materialien Sb_2Te_3 , $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ und Bi_2Te_3 kristallisieren genau wie Bi_2Se_3 in einer rhomboedrischen Kristallstruktur der Raumgruppe $D_{3d}^5 (R\bar{3}m)$. Diese, in Abbildung 2.5 (a) dargestellte Kristallstruktur, ist durch eine starke kovalente Bindung von genau fünf Atomlagen (engl.: *quintuple layer*) entlang der c -Achse des Kristalls geprägt. Die Atome der mittleren Lage (Se2 in (c)) einer Quintupellage stellen ein Inversionszentrum der Struktur dar. Die Quintupellagen untereinander sind hingegen nur schwach durch van-der-Waals-Wechselwirkungen gebunden. Dies ermöglicht die in Abschnitt 3.4 beschriebene, einfache Präparation der Proben durch Spalten im Vakuum. Teilabbildung (d) zeigt die Brillouin-Zone des Volumens (schwarze Linien) und die zweidimensionale Brillouin-Zone der im Experiment untersuchten (111) Oberflächen (blaue Linie). Die Oberflächen-Brillouin-Zone ist hexagonal mit den Symmetriepunkten $\bar{\Gamma}$, \bar{K} , \bar{M} und \bar{M}' und besitzt eine Spiegelebene entlang $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} .

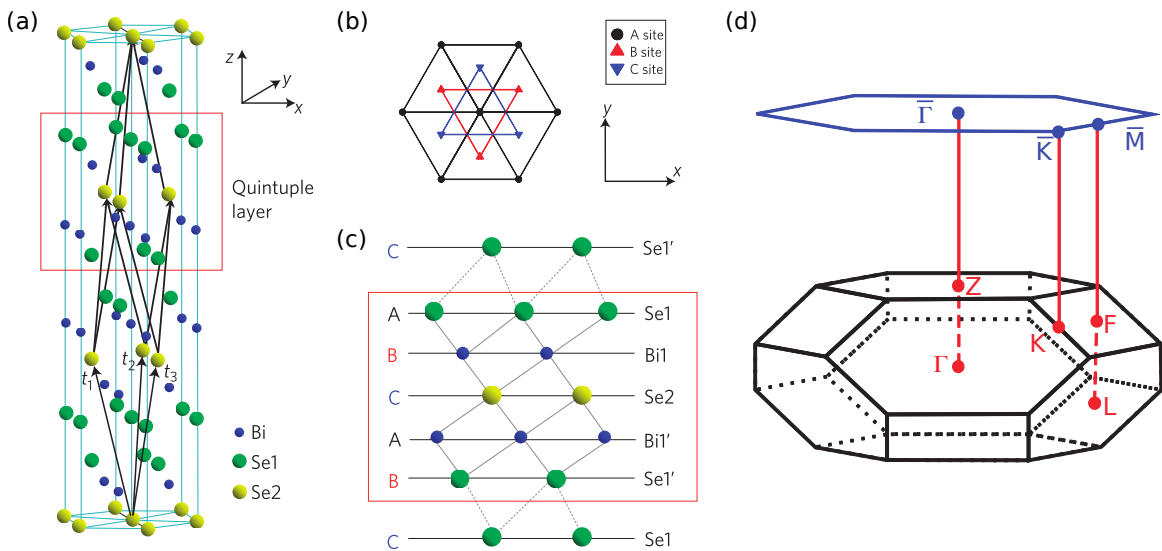


Abb. 2.5: (a) Kristallstruktur von Bi_2Se_3 mit den drei primitiven Gittervektoren t_1, t_2 und t_3 . Eine einzelne Quintupellage ist rot markiert. (b) Aufsicht auf die Kristallstruktur mit den zueinander versetzten Atomen in Lage A bis C. (c) Lage der Atome innerhalb einer Quintupellage mit der Packungsreihenfolge. Die Se2 Atome sind Inversionszentren der Struktur. (d) Brillouin-Zone von Bi_2Se_3 (schwarz) mit Raumgruppe $R\bar{3}m$ und die zweidimensionale Brillouin-Zone der (111) Oberfläche (blau) mit den entsprechenden Hochsymmetriepunkten. (Abbildung aus [37])

Abbildung 2.6 vergleicht die mit Dichtefunktionaltheorie berechnete elektronische Bandstruktur der (111) Oberfläche von Sb_2Te_3 , $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ und Bi_2Te_3 aus [65, 66] und die Stapelreihenfolge der Atome innerhalb einer Quintupellage. Alle drei Bandstrukturen weisen einen näherungsweise linear dispergierenden Oberflächenzustand (schwarze Linie) in der Volumenbandlücke. Der Austausch der mittleren Lage von Te Atomen in Sb_2Te_3 (a) gegen Se in $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ (b) führt zu einer Vergrößerung der Bandlücke und zu einem Absenken des Valenzbandmaximums. Im Inset in Teilabbildung (a) und (b)

ist in Schnitten konstanter Energie die Anisotropie des Oberflächenzustands (engl.: *warping*) bezüglich der Hochsymmetrierichtungen des Kristalls verdeutlicht. Das Warping ist eine Folge der dreizähligen Symmetrie der Volumenbandstruktur und wird in allen aus Bi_2Se_3 , Sb_2Te_3 und Bi_2Te_3 abgeleiteten topologischen Isolatoren beobachtet.

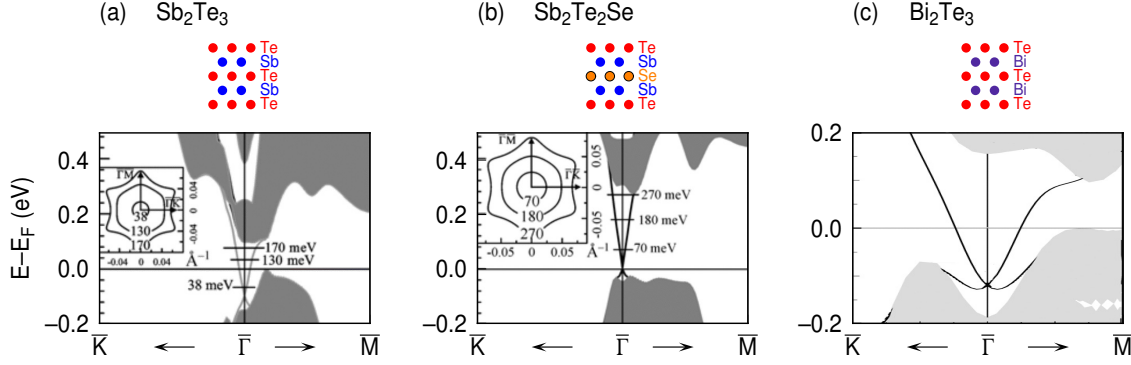


Abb. 2.6: (a-c) Die Stapelreihenfolge der Te, Sb und Se Atome in einer Quintupellage für Sb_2Te_3 , $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$, Bi_2Te_3 sowie die berechnete Oberflächenbandstruktur mit projizierter Volumenbandstruktur (graue Flächen) und dem topologischen Oberflächenzustand (schwarze Linie). Bandstrukturdaten aus [65] (a,b) und [66] (c)

Das aus der besonderen Spinstruktur des Dirac-Kegels abgeleitete *spin-momentum locking*, mit dem Verbot direkter Rückstreuung im Dirac-Kegel, und die lineare Dispersion des Oberflächenzustands lassen eine im Vergleich zu Metallen und Halbleitern stark unterschiedliche Elektronendynamik erwarten. Das Verständnis der Streuprozesse angeregter Elektronen im Dirac-Kegel eines topologischen Isolatoren ist jedoch trotz einer Vielzahl von Untersuchungen [14, 15, 17–20, 62, 67–72] noch vergleichsweise unvollständig.

Die Elektronendynamik in topologischen Isolatoren findet im Allgemeinen auf der Zeitskala einiger Pikosekunden statt. Die Lebensdauer der Elektronen liegt für Proben mit einem Fermi-niveau in einem Volumenband in einem Bereich um wenige 1 ps [12, 14, 17]. Für Proben mit dem Fermi-niveau im Dirac-Punkt steigt die Lebensdauer bis auf 400 ps an [62]. Die hohe Varianz der Lebensdauern ist auf die gegebene oder fehlende Möglichkeit der Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren zurückzuführen. Liegt das Fermi-niveau in einem Volumenband, so ist der Phasenraum zur Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren in den Volumenzuständen für Elektronen im Dirac-Kegel sehr hoch und die Elektron-Loch-Paar-Erzeugung stellt einen effektiven Zerfallskanal dar. Wird das Fermi-niveau wie in [62] in die Volumenbandlücke verschoben, so ist keine effiziente Erzeugung der Elektron-Loch-Paare mehr möglich. Die angeregten Elektronen können jedoch weiterhin über Elektron-Elektron- und Elektron-Phonon-Streuung sowie durch Streuung an Defekten zerfallen. Die in Metallen sehr effektive Elektron-Elektron-Streuung [73] besitzt im Dirac-Kegel aufgrund der linearen Dispersion und

des *spin momentum locking* nur einen verschwindend kleinen Phasenraum und stellt keinen effektiven Zerfallskanal dar. Auch die Elektron-Phonon Streuung zeigt in experimentellen Untersuchungen einen nur geringen Beitrag für den Zerfall angeregter Elektronen [12, 19].

Die Identifizierung der Streukanäle der Elektronen im Dirac-Kegel in der Literatur ist im Allgemeinen, mit Ausnahme der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente mit MIR-Impulsen (Abschnitt 4.2), durch die indirekte Besetzung des Oberflächenzustands (engl.: *indirect filling*) deutlich erschwert. Nach Anregung topologischer Isolatoren wie Bi_2Se_3 und Sb_2Te_3 mit den in der Literatur typischerweise verwendeten Photonenenergien von 1,5 eV wird die maximale Besetzung im Oberflächenzustand erst nach 0,5 bis 1 ps erreicht (vergleiche Abbildung 4.4). Der Grund dafür liegt in der in Abbildung 2.7 skizzierten, indirekten Befüllung des Oberflächenzustands aus den angeregten Volumenzuständen. In Bi_2Se_3 führt die Anregung mit 1,5 eV zu einer transienten Besetzung eines Volumenzustands (a). Auf einer Zeitskala weniger 100 fs relaxiert diese Anregung in das untere Leitungsband und teilweise in den Oberflächenzustand (b). Durch Intrabandstreuung befinden sich die Elektronen nach wenigen Pikosekunden nur noch im Leitungsbandminimum und im Dirac-Kegel (c). Die Besetzung im Dirac-Kegel wird über einen Zeitraum mehrerer Pikosekunden durch Streuung aus dem Leitungsbandminimum aufrecht erhalten (d). Die beobachtete Dynamik im Dirac-Kegel spiegelt daher aufgrund der indirekten Befüllung die Dynamik des Leitungsbands und nicht die des topologischen Oberflächenzustands wieder.

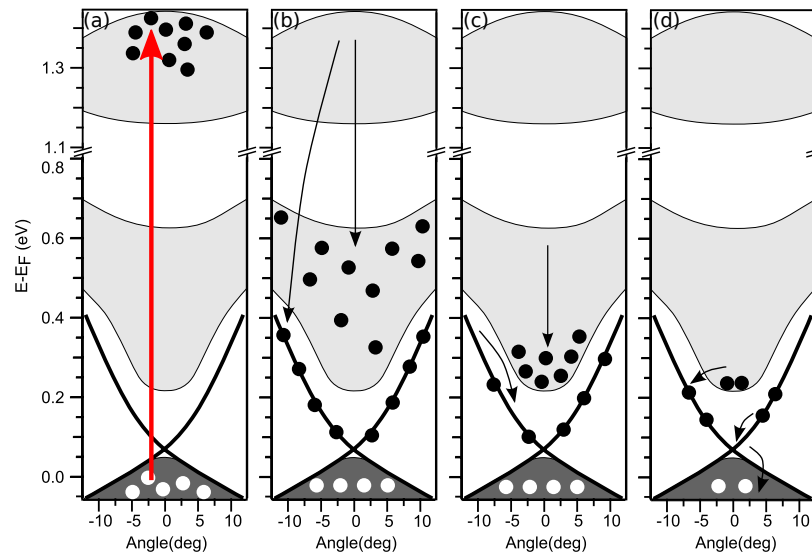


Abb. 2.7: Schema der Streuprozesse in einem topologischen Isolator nach Anregung mit 1,5 eV Photonenenergie. (a) Direkte optische Anregung in Volumenzustände. (b) Indirekte Bevölkung des Oberflächenzustands und des Leitungsbandminimums mit (c) anschließender Intrabandstreuung. (d) Die langlebige Population im Leitungsbandminimum führt zu fortwährender Neubesetzung des Oberflächenzustands. (Abbildung aus [14])

Im Rahmen dieser Arbeit ist es erstmalig gelungen, durch Variation der Photonenenergie die Elektronendynamik ohne die überlagerte indirekte Befüllung aus Volumenzuständen zu untersuchen. Die Nutzung von optischen Laserimpulsen der Photonenenergie $\hbar\omega = 2,55$ eV konnte in Sb_2Te_3 erstmals zusätzlich zur indirekten Befüllung des Oberflächenzustands eine teilweise direkte Anregung im Dirac-Kegel aufzeigen [12]. Mit der Verwendung von MIR-Impulsen mit Photonenenergien von 0,35 eV konnte eine ausschließlich direkte optische Anregung innerhalb des Dirac-Kegels in Sb_2Te_3 gezeigt werden, die indirekte Befüllung aus Volumenbändern ist dabei vollständig unterdrückt [21]. Die in Abschnitt 5 präsentierte Erzeugung und Kontrolle asymmetrischer Besetzungen im topologisch geschützten Oberflächenzustand ist nur aufgrund der direkten optischen Anregung mit MIR-Impulsen und der ausbleibenden indirekten Besetzung möglich.

2.2 Zeitaufgelöste Photoemission

Die wesentliche experimentelle Methode dieser Arbeit ist die zeit- und winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (engl.: *time-resolved ARPES*, *tr-ARPES*). In diesem Abschnitt erfolgt nach einer Einführung der winkelaufgelösten Photoelektronenspektroskopie (ARPES) eine ausführliche Beschreibung der zeitaufgelösten Zweiphotonen-Photoemission (2PPE), die in Kombination mit einer winkelaufgelösten Detektion einen Spezialfall von tr-ARPES darstellt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden neben der winkelaufgelösten 2PPE mit infraroten und optischen Laserimpulsen auch erstmalig Anregungsimpulse im THz-Spektralbereich für tr-ARPES verwendet. In Abschnitt 2.2.3 wird gezeigt, dass für diesen Fall eine fundamentale Änderung in der Art der Wechselwirkung zwischen dem Anregungsimpuls und den Elektronen zu erwarten ist.

2.2.1 Winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie (ARPES)

Die Photoelektronenspektroskopie ist eine experimentelle Methode zur Untersuchung der elektronischen Struktur in Gasen und Festkörpern. Basierend auf dem 1905 von Einstein [74] erstmals korrekt beschriebenen äußeren photoelektrischen Effekt (auch Photoeffekt genannt) wurde die Technik erst um 1960 durch die Entwicklung von hochauflösenden Elektronenspektrometern durch Kai Siegbahn erstmals im Rahmen der Bestimmung der chemischen Zusammensetzung eines Materials (engl.: *Electron Spectroscopy for Chemical Analysis*, *ESCA*) zu einer bedeutenden Messmethode. In den letzten Jahrzehnten [75] hat sich die Photoelektronenspektroskopie aufgrund der stetigen Verbesserung der Elektronenanalysatoren und dem Aufkommen von Lichtquellen höchster Brillianz zu einer der wichtigsten experimentellen Methoden der modernen Festkörperphysik entwickelt.

Der Photoeffekt beschreibt die Emission von Elektronen aus Festkörpern mit spezifischer kinetischer Energie E_{kin} nach Wechselwirkung mit Photonen der Energie $\hbar\omega$. Die Messung der kinetischen Energie erlaubt unter Berücksichtigung der Differenz der Austrittsarbeiten von Probe und Detektor $\Delta\Phi = \Phi_{\text{Probe}} - \Phi_{\text{Detektor}}$, über

$$E_B = E_{\text{kin}} - \hbar\omega + \Delta\Phi \quad (2.1)$$

die Bestimmung der Bindungsenergie E_B des analysierten Elektrons in einem elektronischen Zustand im untersuchten Material. Die Intensität der Photoemission hängt von der Zustandsdichte des Anfangszustands und Endzustands, sowie dem Übergangsmatrixelement ab [76], sodass aus der Messung eines energieaufgelösten Spektrums Rückschlüsse auf die elektronische Struktur der Probe gezogen werden können.

Die mittlere freie Weglänge von Elektronen mit Energien von wenigen 10 eV bis einigen 100 eV liegt, wie von der universellen Kurve [77] beschrieben, im Festkörper typischerweise unterhalb von 1 nm. Die Photoelektronenspektroskopie mit Elektronen innerhalb dieses Energiebereiches ist daher inhärent oberflächensensitiv. Die Untersuchung elektronischer Zustände in Strukturen mit Abständen weniger Nanometer von der Oberfläche ist daher nur durch Verringerung der kinetischen Energie der Elektronen in den Bereich um 1 eV, zum Beispiel durch Photoemission mit Laserquellen, oder durch eine deutliche Erhöhung der kinetischen Energie in den Bereich einiger keV, zum Beispiel im Rahmen der Röntgenphotoemission mit hochenergetischer Röntgenstrahlung (engl.: *HARd X-ray PhotoElectron Spectroscopy*, *HAXPES*), möglich.

Die Entwicklung winkelaufgelöster Detektoren ermöglicht es neben der kinetischen Energie der Photoelektronen auch ihre Richtung respektive den Emissionswinkel zu messen. Für das emittierte Elektron ist aufgrund der Translationsinvarianz an der Oberfläche der Parallelimpuls unter Photoemission erhalten. Da der Impulsübertrag des absorbierten Photons vernachlässigbar ist, kann aus der Messung des Emissionswinkels θ über

$$k_{\parallel} = |\vec{k}| \cdot \sin \theta = \sqrt{2m_e E_{\text{kin}}/\hbar^2} \cdot \sin \theta \quad (2.2)$$

der Parallelimpuls des Elektrons im Material zum Zeitpunkt der Photoemission bestimmt werden. Das beobachtete Photoemissionsspektrum ist damit eine zweidimensionale Projektion der im Allgemeinen dreidimensionalen Bandstruktur und es ist auf diese Weise die Vermessung der gesamten Bandstruktur eines Materials möglich.

Abbildung 2.8 zeigt am Photoemissionsspektrum des dreidimensionalen topologischen Isolators Bi_2Te_3 eindrucksvoll die Fähigkeiten winkelaufgelöster Photoelektronenspektroskopie. In dem Energie-Impuls-Spektrum sind sowohl der linear dispergierende Oberflächenzustand als auch das Valenzband der Volumenbandstruktur direkt erkennbar. Eine Auswertung der Dispersion des Oberflächenzustands ergibt für die in Kapitel 6 untersuchte Bi_2Te_3 Probe eine Fermigeschwindigkeit von $v_F = 4,1 \text{ \AA/fs}$.

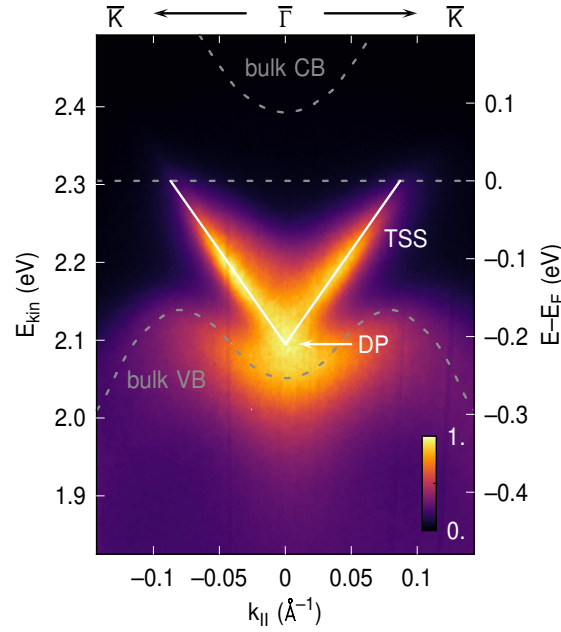


Abb. 2.8: Winkelaufgelöstes Photoemissionsspektrum von Bi_2Te_3 bei einer Photonenenergie von $\hbar\omega = 6,42 \text{ eV}$ mit dem topologisch geschützten Oberflächenzustand (TSS) und dem Dirac-Punkt (DP). Der TSS liegt zwischen Valenzband (bulk VB) und dem Leitungsband (bulk CB). Die Fermigeschwindigkeit ergibt sich aus der Steigung der linearen Dispersion des TSS zu $v_F = 4,1 \text{ Å/fs}$. (Lage der Volumenbänder aus [78])

Für Volumenzustände muss bei der Interpretation der Photoemissionsspektren und der Auswertung der energetischen Positionen der elektronischen Zustände auf die k_z -Dispersion senkrecht zur Oberfläche geachtet werden. In Abhängigkeit der verwendeten Photonenenergie ändert sich der k_z -Wert des in der Photoemission untersuchten Bereiches innerhalb der Bandstruktur. Für Zustände mit starker Dispersion in k_z -Richtung kann damit die Intensität und die Energieposition eines Zustands, wie in Abbildung 2.9 gezeigt, in Abhängigkeit der verwendeten Photonenenergie stark variieren. Oberflächenzustände besitzen hingegen aufgrund der Diskontinuität an der Oberfläche keine k_z -Dispersion. Experimentell kann dies genutzt werden um durch geschickte Wahl der Photonenenergie das Intensitätsverhältnis von Oberflächen- zu Volumenbändern zu optimieren oder um eine unbekannte Signatur im Photoemissionsspektrum einem nicht dispergierenden Oberflächen- oder einem dispergierenden Volumenzustand zuzuordnen.

Die winkelaufgelöste Photoemission hat sich aufgrund dieser Möglichkeiten zu einer der Standard-Messmethoden experimenteller Festkörperphysik entwickelt. Speziell für die 3D topologischen Isolatoren konnte sie über die direkte, zum Teil spinaufgelöste Abbildung des linear dispergierenden Oberflächenzustands einen entscheidenden Beitrag zur experimentellen Verifikation der ungewöhnlichen Eigenschaften dieser neuen Klasse von Materialien liefern [7, 8, 11, 30, 46, 49, 50, 55, 78–84].

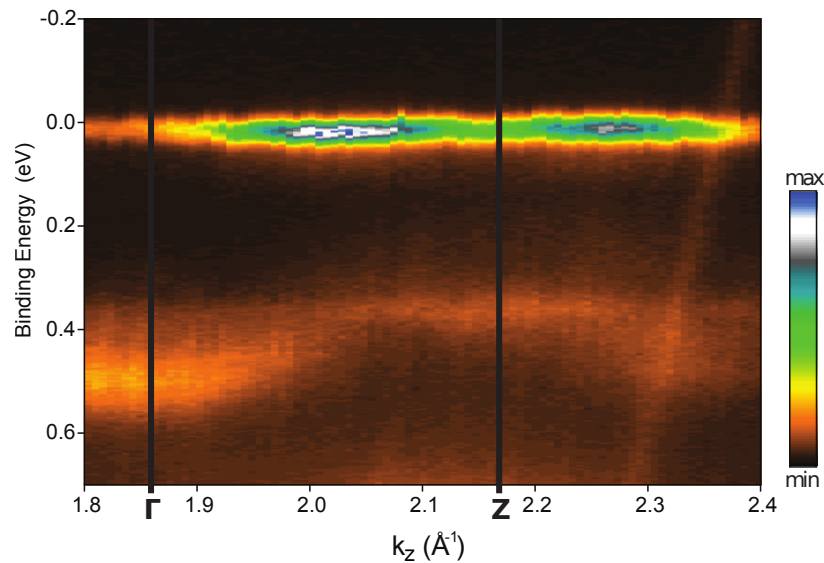


Abb. 2.9: Photoemissionsintensität der Volumenbänder in Bi_2Te_3 für senkrechte Emission in Abhängigkeit der Photonenenergie, aufgetragen über dem Kristallimpuls senkrecht zur Oberfläche. Das Leitungsbandminimum (Bindungsenergie 0,025 eV) zeigt eine starke Modulation der Intensität in Abhängigkeit von k_z . Das Valenzband dispergiert für die untersuchten Werte von k_z in einem Energiebereich von 0,35 bis 0,6 eV. (Abbildung aus [78])

2.2.2 Zweiphotonen-Photoemission (2PPE)

Die Zweiphotonen-Photoemission (engl.: *two-photon photoemission*, *2PPE*) ist eine Erweiterung der im vorherigen Abschnitt eingeführten Photoelektronenspektroskopie, die es ermöglicht, auch zunächst unbesetzte Zustände zu spektroskopieren. Dabei wird ein Elektron durch ein erstes Photon in einen unbesetzten Zustand angeregt und erst im zweiten Schritt durch ein weiteres Photon, vergleichbar zur einfachen Photoemission (1PPE), emittiert. Erste 2PPE-Experimente verwendeten Laser mit Pulsdauern im ps- oder ns-Bereich um unbesetzte Zustände an Festkörperoberflächen, zunächst noch ohne Zeit- und Winkelauflösung, zu spektroskopieren [85, 86]. Durch das Einführen einer zeitlichen Verzögerung wurde diese Technik schon bald darauf zu einer zeitaufgelösten Anrege-Abfrage-Spektroskopie erweitert [87], die es erlaubt, die zeitliche Entwicklung der Besetzung eines transient angeregten Zwischenzustands zu untersuchen. Die Anwendung der zeitaufgelösten 2PPE hat zu einem wesentlichen Fortschritt im Verständnis von ultraschnellen elastischen und inelastischen Streuprozessen an Metalloberflächen und -grenzflächen geführt [24, 73, 88–105], insbesondere auch durch die Spektroskopie von Bildpotentialzuständen durch unsere Arbeitsgruppe [13, 106–129].

In Kombination mit winkelaufgelöster Detektion wird für diese Technik oft auch der Oberbegriff zeitaufgelöstes ARPES (engl.: *time-resolved*, *tr-ARPES*) verwendet. Insbesondere wenn die zeitliche Entwicklung sowohl von besetzten als auch unbesetzten Zuständen im Impulsraum beobachtet wird, während sich die 2PPE im engeren

Sinne auf unbesetzte Zustände fokussiert. Bei der 2PPE werden daher die Photonenenergien der beiden beteiligten Photonen in der Regel so gewählt, dass keine der beiden die Austrittsarbeit der untersuchten Probe überschreitet. Auf diese Weise wird der Untergrund durch 1PPE durch die einzelnen Photonen unterdrückt. Damit sind mit der 2PPE insbesondere unbesetzte Zustände zugänglich, deren Energie zwischen der Fermienergie und der Vakuumenergie liegt.

Die Verwendung identischer Photonen erlaubt es, mit Hilfe der interferometrischen 2PPE die Elektronendynamik auf einer subzyklen Zeitskala [89, 130] oder im Rahmen einer 2D-Spektroskopie [131] zu untersuchen. Die Verwendung zweier verschiedener Photonenenergien bringt demgegenüber andere grundlegende Vorteile. Einerseits kann durch unterschiedliche Intensitäten von Anrege- und Abfrageimpuls das Verhältnis von Signal zu Untergrund optimiert werden. Andererseits enthält die Verzögerung und die Asymmetrie des Signals zusätzliche Informationen, welche die Bestimmung von Lebensdauern kleiner der Dauer der Laserimpulse erleichtert. Außerdem erlaubt es die Unterscheidung zwischen Anrege- und Abfrageprozessen und vereinfacht damit die Zuordnung des transient angeregten Zwischenzustands.

Winkelaufgelöste Detektion wurde für die 2PPE zunächst verwendet, um Oberflächenzustände von Halbleitern gegenüber Volumenzuständen zu diskriminieren [132]. Wie bei den ersten ARPES-Experimenten wurde dies durch Drehen der Probe relativ zum Elektronenspektrometer realisiert. Mit dieser Methode wurden in unserer Gruppe auch die ersten Messungen der Lebensdauer von unbesetzten Zuständen an einer Metalloberfläche als Funktion des Parallelimpulses durchgeführt [110]. Die Kombination aus zeitaufgelöster Photoemission und paralleler Winkeldetektion wurde zuerst von R. Haight durch Verwendung eines Flugzeitspektrometers mit vielen diskreten Detektoren realisiert [133, 134]. Dafür wurden, mit Hilfe der Erzeugung höherer Harmonischer (HHG), Abfrageimpulse mit Energien im XUV-Bereich verwendet. Diese Technik fand erst viel später weitere Verbreitung [135–138]. Durch die Einführung bildgebender Detektoren, in Verbindung mit winkelaufgelösten Modi für die elektrostatischen Linsen der Elektronenanalysatoren, ist es auch in der zeitaufgelösten 2PPE möglich geworden, für jede Zeitverzögerung die Energie und den Impuls der Photoelektronen entlang einer Oberflächenrichtung über einen jeweils quasi-kontinuierlichen Bereich parallel zu detektieren, wie unsere Gruppe erstmals an einer Metalloberfläche demonstriert hat [114]. Durch Kombination eines Flugzeitdetektors mit einem orts-aufgelösten Nachweis ist es sogar möglich geworden, die volle 2D Dispersion transient besetzter Zustände parallel zu detektieren [139] und als Funktion der Zeit zu verfolgen [126, 140].

Das grundlegende Prinzip der zeit- und winkelaufgelösten 2PPE ist in Abbildung 2.10 skizziert. Dabei absorbiert ein Elektron ein erstes Photon mit einer Photonenenergie, die typischerweise kleiner der Austrittsarbeit Φ des Materials ist. Das Elektron wird auf diesem Weg aus einem besetzten Zustand unterhalb der Fermienergie E_F in einen unbesetzten Zustand zwischen E_F und der Vakuumenergie E_{vac} ange-

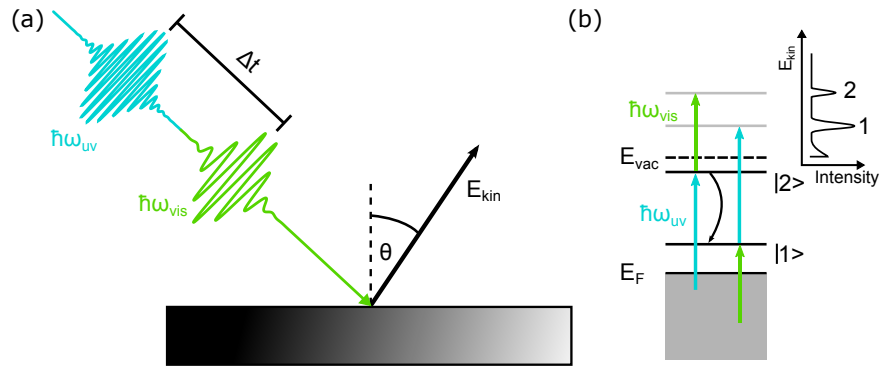


Abb. 2.10: (a) Schema des 2PPE Prozesses im Realraum. Das nach Einstrahlen des Anregungsimpulses ($\hbar\omega_{\text{vis}}$) in einen unbesetzten Zustand angeregte Elektron wird vom um Δt zeitlich versetzten Abfrageimpuls ($\hbar\omega_{\text{UV}}$) photoemittiert. Im Detektor werden anschließend die kinetische Energie E_{kin} und der Emissionswinkel θ gemessen. (b) Schema des 2PPE Prozesses im Impulsraum. Ein Elektron wird durch Absorption eines Photons von einem Zustand unterhalb der Fermienergie E_F in den unbesetzten Zustand $|1\rangle$ oder $|2\rangle$ angeregt und anschließend photoemittiert. Innerhalb der Zeit Δt kann das Elektron aus dem Zustand $|2\rangle$ in den Zustand $|1\rangle$ relaxieren und von dort photoemittiert werden.

regt. Absorbiert das angeregte Elektron anschließend ein weiteres Photon, so wird es photoemittiert und es können wie im Fall der 1PPE in einem Elektronendetektor die kinetische Energie E_{kin} und der Emissionswinkel θ analysiert werden. Auf diese Weise ist es möglich, die Bandstruktur der unbesetzten elektronischen Zustände eines Materials zu bestimmen.

Abbildung 2.10 (b) skizziert die Prozesse der 2PPE im Impulsraum am Beispiel zweier unbesetzter Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ unter Verwendung von zwei zeitlich zueinander versetzten Laserimpulsen der Photonenenergien $\hbar\omega_{\text{vis}}$ und $\hbar\omega_{\text{UV}}$. In Abhängigkeit der zeitlichen Reihenfolge und des Abstands Δt der Laserimpulse zueinander beobachtet man unterschiedlich intensive Signale 1 und 2 im energieaufgelösten Photoemissionsspektrum.

Trifft zuerst der Impuls mit Photonenenergie $\hbar\omega_{\text{vis}}$ auf die Probe, so können aufgrund der energetischen Lage der Zustände die Elektronen aus besetzten Zuständen unterhalb der Fermienergie E_F nur in den unbesetzten Zustand $|1\rangle$ angeregt werden. Die Elektronen können anschließend durch Absorption eines zweiten Photons aus dem Abfrageimpuls mit Photonenenergie $\hbar\omega_{\text{UV}}$ photoemittiert werden. Aufgrund der endlichen Lebensdauer der angeregten Elektronen nimmt die Besetzung im Zustand $|1\rangle$ mit der Zeit kontinuierlich ab. Diese Abnahme wird im Detektor als ein mit steigendem Δt immer weiter abnehmendes Photoemissionssignal registriert.

Es ist des Weiteren möglich, dass die Laserimpulse ihre Rolle im 2PPE Prozess tauschen. Ein Elektron in einem besetzten Zustand kann ein Photon der Energie $\hbar\omega_{\text{UV}}$ absorbieren und in den Zustand $|2\rangle$ angeregt werden. Die Elektronen können danach von einem Impuls der Photonenenergie $\hbar\omega_{\text{vis}}$ emittiert werden. Auch in diesem Szenario wird die Photoemissionsintensität durch den Zerfall der Besetzung in

$|2\rangle$ abnehmen. Durch den Austausch von Anregungs- und Abfrageimpuls scheint die Dynamik jedoch in die entgegengesetzte Richtung zu verlaufen. Die Untersuchung der Dynamik der unbesetzten Zustände kann auf diese Weise sowohl die Anregungspfade aufzeigen, als auch durch den Vergleich der Dynamik komplexe Zerfallskanäle (zum Beispiel den Zerfall aus $|2\rangle$ nach $|1\rangle$) aufdecken.

Die Zeitabhängigkeit der 2PPE-Spektren kann mit Hilfe der optischen Blochgleichungen unter Berücksichtigung der kohärenten Wechselwirkung zwischen Licht und Materie in einem Mehrniveau-System beschrieben werden [95, 107, 141–143]. In diesem Rahmen ist eine Betrachtung der Polarisierung und Population in einem System gekoppelter Zustände nach optischer Anregung möglich. Zusätzlich zur Dynamik von Dephasierung und Besetzung beinhalten die optischen Blochgleichungen auch eine Beschreibung kohärenter nichtlinearer Photoemission, der sogenannten nicht-resonanten 2PPE von besetzten Zuständen. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente kann jedoch auf die Verwendung der optischen Blochgleichungen verzichtet werden. Die Beschreibung erfolgt stattdessen im Rahmen eines semiklassischen Ratenmodells. Diese Vereinfachung ist möglich, da die beobachteten Lebensdauern im Pikosekundenbereich deutlich über typischen Dephasierungszeiten und den Pulsdauern der Laserimpulse liegen und damit die Einflüsse der Dephasierung auf die Besetzungsdynamik vernachlässigbar klein sind.

Ein Ratenmodell ist ein System gekoppelter Differentialgleichungen, die für jeden betrachteten Zustand neben der Anregung durch den Laserimpuls sowohl alle Streuprozesse aus diesem Zustand als auch alle Streuprozesse aus anderen Zuständen in den betrachteten hinein modelliert. Für die Besetzung f_i des i -ten Zustands lässt sich die allgemeine Differentialgleichung

$$\frac{df_i}{dt} = A_i \delta(t) - \sum_{n \neq i} \Gamma_{i,n} f_i (1 - f_n) + \sum_{n \neq i} \Gamma_{n,i} f_n (1 - f_i) \quad (2.3)$$

aufstellen. Dabei ist $\delta(t)$ der Laserimpuls mit Intensität A_i und $\Gamma_{i,n}$ die Streurrate aus dem Zustand i in den Zustand n . Die Streuung aus einem Zustand i heraus in den Zustand n skaliert dabei mit der momentanen Besetzung f_i in diesem Zustand und aufgrund des Pauliverbots über $(1 - f_n)$ auch mit der Besetzung im Zielzustand. Aus der Anpassung eines solchen Differentialgleichungssystems an die experimentellen Daten ist es möglich, die Streuraten Γ und Lebensdauern $\tau = 1/\Gamma$ einzelner Zustände innerhalb der untersuchten Bandstruktur zu bestimmen. Die 2PPE ist damit in der Lage, die Lebensdauern angeregter Elektronen direkt in der Zeitdomäne zu messen und die einzelnen Zerfallskanäle elektronischer Zustände zu bestimmen.

2.2.3 Photoemissionsexperimente mit THz-Anregung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden für die zeit- und winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie erstmalig Anregungsimpulse im THz-Bereich verwendet. Während bei der üblichen zeit- und winkelaufgelösten 2PPE oder der tr-ARPES die elektronische Anregung durch die Absorption einzelner Photonen des Anregungsimpulses erfolgt (vergleiche Abbildung 2.10), ist der dominierende Effekt bei der Anregung mit THz-Impulsen eine Beschleunigung der Elektronen in der Nähe der Fermienergie durch das elektrische Feld des THz-Impulses, gemäß dem Blochschen Beschleunigungstheorem (Abschnitt 2.3.1).

Die Photonenenergie $\hbar\omega$ beträgt bei 1 THz nur 4,1 meV und liegt somit bei den hier untersuchten topologischen Isolatoren um mehr als eine Größenordnung unterhalb der Bandlücke. Ein Interbandübergang kann deshalb nur über einen extrem nichtlinearen Multiphotonenprozess hervorgerufen werden, oder dadurch, dass das elektrische THz-Feld die Bänder so stark verbiegt, dass Elektronen resonant vom Valenzband ins Leitungsband tunneln können (Franz-Keldysh-Effekt) [144, 145]. Eine Abschätzung darüber, welcher dieser konkurrierenden Prozesse gegebenenfalls in Betracht gezogen werden muss, liefert der Keldysh-Parameter

$$\gamma = \omega \frac{\sqrt{2m_e \varepsilon_B}}{eE}. \quad (2.4)$$

Ist er groß ($\gamma \gg 1$), so ist der Photonencharakter des THz-Impulses relevant. Für kleine Keldysh-Parameter ($\gamma \ll 1$) dominiert die semiklassische Wechselwirkung mit den elektrischen Feldtransienten den Übergang [146].

Die Kreisfrequenz der in Kapitel 6.2 verwendeten THz-Impulse ist um $\omega = 2\pi \cdot 1$ THz zentriert, die Feldstärke im Festkörper bei s-polarisierter Anregung erreicht Werte von $E = 2$ kV/cm, der Energieabstand der Dirac-Elektronen vom Leitungsband beträgt $\varepsilon_B = 0.1$ eV (siehe Abbildung 2.8). Diese experimentellen Bedingungen entsprechen einem Keldysh-Parameter von etwa 100. Gleichzeitig ist die Intensität der THz-Impulse um etwa drei Größenordnung niedriger als die Intensität der für die Experimente in den Kapiteln 4 und 5 verwendeten Anregimpulse im mittleren Infrarotbereich, bei denen keine Multiphotonenabsorption auftritt. Die Wirkung des elektrischen Feldes des THz-Impulses bleibt deshalb auf eine Umverteilung der Elektronen im Dirac-Kegel beschränkt. Interbandübergänge werden durch die THz-Impulse nicht induziert. Dies gilt auch für p-polarisierte THz-Impulse mit Feldstärken von 100 kV/cm. Auch hier ist der Keldysh-Parameter noch deutlich größer als eins.

Ein weiterer wichtiger Unterschied der THz-Experimente zur herkömmlichen zeitaufgelösten Photoemission an Oberflächen besteht darin, dass die Wirkung des elektrischen Feldes der THz-Impulse auf die photoemittierten Elektronen im Vakuum nicht vernachlässigbar ist. Das photoemittierte Elektron gewinnt oder verliert durch die Wechselwirkung Energie und Impuls. Wie in Kapitel 6.1 im Detail ausgeführt

wird, muss dieser Effekt einerseits für eine genaue Analyse der gemessenen Spektren berücksichtigt werden und ermöglicht es andererseits, die Feldstärke-Transienten der THz-Impulse an der Probenoberfläche genau zu bestimmen.

Als Abschätzung der Größenordnung des Effekts kann die mittlere Energie dienen, die ein Elektron durch die Beschleunigung in einem oszillierenden elektrischen Feld gewinnt. Diese „Ponderomotives Potential“ (engl.: *quiver energy*) genannte Energie

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} \quad (2.5)$$

ist eine wichtige Größe der Physik starker Laserfelder [147]. Sie erreicht für die in Kapitel 6 verwendeten p-polarisierten THz-Felder mit Feldstärken von 100 kV/cm Werte von etwa 100 meV. Im ultravioletten Wellenlängenbereich, wie er für die Abfrageimpulse verwendet wird, bleibt U_p mit 15 μeV dagegen sehr klein.

	λ	$\hbar\omega$	I	E	U_p
THz	300 μm	4.1 meV	10 MW/cm ²	100 kV/cm	100 meV
IR	4 μm	0.31 eV	1 GW/cm ²	0,3 MV/cm	150 μeV
UV	200 nm	6.1 eV	0,1 GW/cm ²	0,1 MV/cm	15 μeV

Tab. 2.1: Kennzahlen und Stärke des ponderomotiven Potentials U_p der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Laserimpulse.

Tabelle 2.1 gibt einen Überblick über die Größenordnung der in den Experimenten dieser Arbeit verwendeten Laserintensitäten, der elektrischen Felder auf der Oberfläche und der ponderomotiven Energie. Obwohl das elektrische Feld der für die Photoemission verwendeten UV-Impulse größere Werte als das der THz-Impulse erreicht, ist die direkte Wirkung des elektrischen Feldes auf die Elektronen wegen der viel höheren Frequenz vernachlässigbar klein. Die Elektronen werden während der viel kürzeren optischen Zyklen viel kleinere Auslenkungen erfahren als im THz-Bereich. Dies gilt gleichermaßen im Vakuum als auch im Festkörper. Auch für die Experimente in den Kapiteln 4 und 5 mit MIR-Anregeimpulse und entsprechend längerer Wellenlänge ist bei den verwendeten experimentellen Parametern das ponderomotive Potential $U_p \simeq 150 \mu\text{eV}$ im photoelektronenspektroskopisch nicht messbaren Bereich.

2.3 Elektrische Ströme im Impulsraum

Dieser Abschnitt soll im Hinblick auf die Untersuchung von Strömen in topologischen Isolatoren eine kurze Einführung in die Beschreibung bewegter Ladungsträger in Festkörpern geben. Dafür wird im ersten Teil die Verbindung zwischen einem Strom im Festkörper und der Asymmetrie der Elektronen im k -Raum aufgezeigt. Anschließend wird die Beschreibung der Dynamik solcher asymmetrischen Verteilungen im Rahmen der Boltzmann-Gleichung beschrieben. Für eine detailliertere Beschreibung der präsentierten Zusammenhänge sei auf die Standardwerke der Festkörperphysik [148–150] verwiesen.

2.3.1 Beschleunigung von Bloch-Elektronen

In einer semiklassischen Beschreibung können bewegte Ladungsträger in Festkörpern im Impulsraum als Wellenpakete von Blochwellen [151] aufgefasst werden. Die Bewegung der Wellenpakete lässt sich über die Gruppengeschwindigkeit

$$\vec{v}_e(\vec{k}) = \frac{1}{\hbar} \nabla_{\vec{k}} \varepsilon(\vec{k}) \quad (2.6)$$

charakterisieren. Die Geschwindigkeit der Kristallelektronen folgt damit direkt aus der Dispersionsrelation $\varepsilon(\vec{k})$. Für Elektronen im linear dispergierenden Oberflächenzustand eines topologischen Isolators ist $v_e(\vec{k}) = v_F$ konstant und alle Elektronen bewegen sich unabhängig ihrer Energie mit der gleichen Gruppengeschwindigkeit v_F , auch Fermigeschwindigkeit genannt.

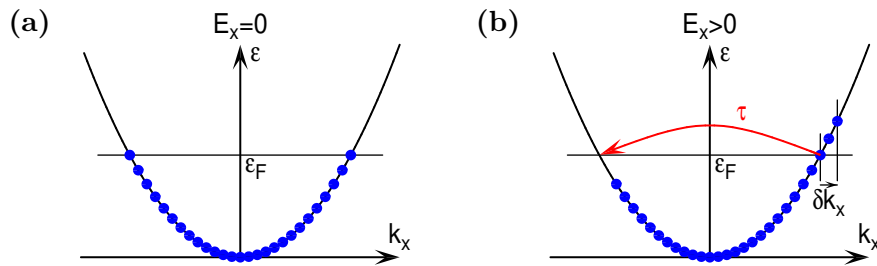


Abb. 2.11: (a) Die symmetrische Verteilung der Elektronen ohne externes Feld ($E_x = 0$). (b) In einem externen elektrischen Feld ($E_x > 0$) stellt sich im Gleichgewicht von Beschleunigung und Streuung eine um δk_x verschobene Verteilung ein.

In einem Festkörper sind im Gleichgewichtszustand alle elektronischen Zustände bis zur Fermienergie ε_F besetzt. Wie in 2.11 (a) gezeigt stellt sich dabei eine symmetrische Verteilung aller Elektronen im k -Raum ein. Wird nun ein elektrisches Feld ($E_x > 0$) angelegt, werden die Elektronen beschleunigt. Diese Beschleunigung ist auch

für Blochelektronen konstant und es gilt das Blochsche Beschleunigungstheorem

$$\hbar \frac{\partial \vec{k}}{\partial t} = -e \vec{E}. \quad (2.7)$$

Die symmetrische Verteilung der Elektronen im k -Raum wird asymmetrisch. Dies bedeutet, dass sich mehr Elektronen zum Beispiel in x -Richtung bewegen als in die entgegengesetzte $-x$ -Richtung. In Summe entsteht damit eine Nettobewegung der Ladungsträger und es fließt ein elektrischer Strom.

In einem idealisierten Modellsystem können die Elektronen bis an den Rand der Brillouin-Zone beschleunigt werden. In realen Systemen wird, wie in 2.11 (b) skizziert, die Asymmetrie durch die Streuung von Elektronen limitiert und es stellt sich ein dynamischer Gleichgewichtszustand mit einer um δk_x verschobenen Elektronenverteilung ein. Die Stärke der Verschiebung δk_x kann für kleine Verschiebungen und kurze Streuzeiten τ der angeregten Elektronen aus der Betrachtung des Gleichgewichtszustands abgeleitet werden. Sie skaliert unter diesen Bedingungen mit der Stärke des Feldes E_x .

$$\delta k_x = \frac{-e E_x \tau}{\hbar} \quad (2.8)$$

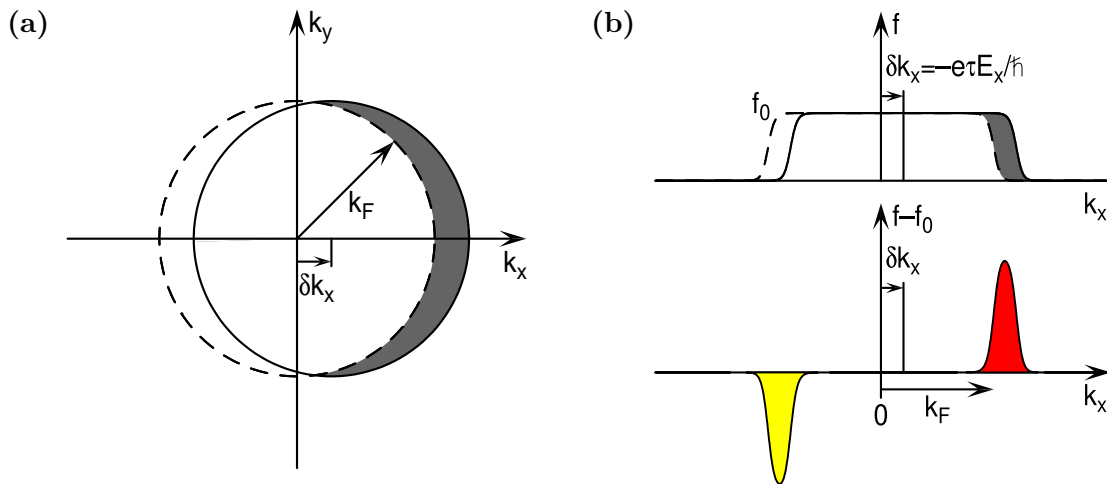


Abb. 2.12: (a) Die um δk_x verschobene Fermikugel und die im Vergleich zur Situation ohne Feld neu besetzten Zustände (grau unterlegt). (b) Ein Schnitt durch die verschobene und die unverschobene Verteilungsfunktion f und f_0 . Aus der Differenz $f - f_0$ kann die Änderung der Besetzung (rote und gelbe Flächen) bestimmt werden.

In der dreidimensionalen Bandstruktur eines Metalls führt, wie in Abbildung 2.12 (a) gezeigt, ein elektrisches Feld zur Verschiebung der gesamten Fermikugel um δk_x . Die in Abbildung 2.12 (b) gezeigte Verteilungsfunktion f_0 (gestrichelte Linie) der Elektronen im Grundzustand unterscheidet sich nur im Bereich um den Fermiwellenvektor $\pm k_F$ von der um δk_x verschobenen Verteilung f . Die Veränderung $f - f_0$ der Zustandsdichte durch die Verschiebung der Fermikugel ist damit ebenfalls auf einen

kleinen Bereich um k_F begrenzt und für den Stromtransport im Material sind daher nur die Elektronen nahe der Fermienergie verantwortlich.

Im Rahmen dieser Arbeit soll die Möglichkeit untersucht werden, durch optische Anregung von Elektronen oder durch Beschleunigung der Elektronen in elektrischen Feldern einen Photostrom in einem topologischen Isolator zu erzeugen. Die grundsätzliche Fähigkeit der zeit- und winkelaufgelösten 2PPE, die Asymmetrie der Elektronenverteilung im k -Raum direkt zu bestimmen, wurde in Experimenten an Bildpotenzialzuständen vor wohldefinierten Metalloberflächen in dieser Arbeitsgruppe erstmalig gezeigt [13].

2.3.2 Boltzmann-Gleichung

Die im Rahmen dieser Arbeit mit THz-Anregung durchgeführten Experimente an topologischen Isolatoren zeigen aufgrund der langen Streuzeit τ und der hohen Feldstärke des niederfrequenten elektrischen Feldes eine substantielle Verschiebung der Fermikugel. Das gesamte System wird durch die beobachtete Beschleunigung der Elektronen in einen starken Nichtgleichgewichtszustand getrieben. Die Beschreibung der dynamischen Veränderungen der Elektronenverteilung erfolgt daher im Rahmen der Boltzmann-Gleichung.

Die Boltzmann-Gleichung, auch Boltzmann-Transportgleichung, ist eine semiklassische lineare Integro-Differentialgleichung zur Beschreibung der Zeitentwicklung einer Verteilungsfunktion $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$ im Nichtgleichgewichtszustand in Abhängigkeit vom Ort \vec{r} , der Geschwindigkeit \vec{v} und der Zeit t . Ursprünglich im Rahmen der statistischen Physik und kinetischen Gastheorie motiviert [152], hat die Boltzmann-Gleichung auch bei der Modellierung der Transportprozesse von Ladungsträgern in Halbleitern und Metallen einen hohen Stellenwert [148, 153].

Die Boltzmann-Gleichung basiert auf der Annahme, dass sich die zeitliche Änderung der Verteilungsfunktion $f(\vec{k}) \hat{=} f(\vec{r}, \vec{k}, t)$ als Summe voneinander unabhängiger Änderungen aufgrund von Diffusion, der Wechselwirkung mit externen Feldern und durch Streuprozesse darstellen lässt.

$$\frac{\partial f(\vec{r}, \vec{k}, t)}{\partial t} = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{Diffusion}} + \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{Felder}} + \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{Streuung}} \quad (2.9)$$

Der Beitrag der Diffusion aufgrund räumlicher Inhomogenitäten der Verteilung ergibt sich zu

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{Diffusion}} = -\vec{v} \nabla_{\vec{r}} f(\vec{r}, \vec{k}, t). \quad (2.10)$$

Für die Wechselwirkung mit elektromagnetischen Wellen über die Lorentzkraft lässt sich der entsprechende Beitrag als

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{\text{Felder}} = -\vec{k} \nabla_{\vec{k}} f(\vec{r}, \vec{k}, t) = \frac{e}{\hbar} \left(\vec{E} + \frac{1}{c} \vec{v} \times \vec{B} \right) \nabla_{\vec{k}} f(\vec{r}, \vec{k}, t) \quad (2.11)$$

schreiben, mit dem elektrischen und magnetischen Feld \vec{E} und \vec{B} . Da die Geschwindigkeiten der hier untersuchten Ladungsträger deutlich unterhalb der Lichtgeschwindigkeit c liegen, wird der Beitrag von $(\vec{v}/c) \times \vec{B}$ vernachlässigt. Die Modellierung der Streuung unterscheidet nicht zwischen den verschiedenen Streupartnern oder Streuprozessen. Alle Stöße, unabhängig ob es sich um Stöße der Elektronen untereinander, mit Phononen, Defekten oder weiteren Partner handelt, werden im sogenannte Kollisionsintegral oder Stoßintegral

$$\left(\frac{\partial f(\vec{k})}{\partial t}\right)_{\text{Streuung}} = - \sum_{\vec{k}_1 \vec{k}' \vec{k}'_1} W_{\vec{k}\vec{k}_1; \vec{k}' \vec{k}'_1} \left[f(\vec{k}) f(\vec{k}_1) (1 - f(\vec{k}')) (1 - f(\vec{k}'_1)) \right. \\ \left. - (1 - f(\vec{k})) (1 - f(\vec{k}_1)) f(\vec{k}') f(\vec{k}'_1) \right] \quad (2.12)$$

zusammen gefasst. Dabei ist $W_{\vec{k}\vec{k}_1; \vec{k}' \vec{k}'_1}$ die Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeit zweier Teilchen aus den Zuständen \vec{k} und \vec{k}_1 in zwei Zustände mit \vec{k}' und \vec{k}'_1 .

Unter der Annahme, dass die untersuchten Streuprozesse isotrop oder elastisch sind, die Richtungen der Teilchen nach dem Stoß unabhängig von den Richtungen vor dem Stoß sind oder die Streuung ohne Energieverlust stattfindet, kann das Kollisionsintegral substantiell vereinfacht werden. Hierzu wird die Nichtgleichgewichtsverteilung $f = f^0 + f'$ als Summe einer Gleichgewichtsverteilung f^0 , in die das System zurückstrebt, und einer durch die äußeren Kräfte verursachten Störung f' beschrieben. Das Kollisionsintegral kann in der sogenannten Relaxationszeitnäherung daher durch den Zusammenhang

$$\left(\frac{\partial f(\vec{k})}{\partial t}\right)_{\text{Streuung}} = - \frac{f(\vec{k}) - f^0(\vec{k})}{\tau(\vec{k})} \quad (2.13)$$

ersetzt werden. Dieser beruht auf der Annahme, dass die Rückkehr in den Gleichgewichtszustand exponentiell mit der Relaxationszeit $\tau(\vec{k})$ erfolgt. Das im Allgemeinen energie- und impulsabhängige τ kann dabei als effektive Streuzeit aus der Summe der einzelnen Streuprozesse aufgefasst werden. Die Nutzung der Relaxationszeitnäherung verwandelt die Integro-Differentialgleichung des Weiteren in eine partielle Differentialgleichung und vereinfacht das Finden einer Lösung auch aus mathematischer Sicht deutlich.

In den in Abschnitt 6.2.3 präsentierten Simulationen der Intrabandbeschleunigung im Dirac-Kegel des topologischen Isolators Bi_2Te_3 ist der Streuterm als Summe elastischer und inelastischer Stöße modelliert. Die inelastische Streuung wird in Relaxationszeitnäherung nach Gleichung 2.13 betrachtet, als Gleichgewichtsverteilungsfunktion $f_{\vec{k}}^0$ wird eine Fermi-Dirac-Verteilung angenommen:

$$f^0(\vec{k}) = \frac{1}{e^{(\varepsilon(\vec{k}) - \mu)/(kT)} + 1} \quad (2.14)$$

Die inelastische Streuung führt zu einer Relaxation der Nichtgleichgewichtsverteilung im Dirac-Kegel zurück in den Gleichgewichtszustand.

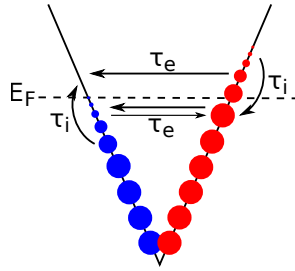


Abb. 2.13: Schema der berücksichtigten Streuprozesse im asymmetrisch besetzten topologischen Oberflächenzustand. Elektronen oberhalb der Fermienergie E_F können inelastisch mit einer Zerfallszeit τ_i unter Energieverlust in Richtung Fermienergie zerfallen. In gleicher Weise relaxiert eine unter E_F verschobene Verteilung wieder zurück zur Fermienergie. Die elastische Streuung mit Zerfallszeit τ_e führt zu einem Ausgleich der Besetzung zwischen beiden Verteilungen.

Die elastische Streuung im Dirac-Kegel beschreibt die reine Richtungsänderung eines Elektrons nach einem Stoß mit beliebigem Partner ohne Energieverlust. Das Kollisionsintegral vereinfacht sich für elastische Streuungen [153] zu

$$\left(\frac{\partial f(\vec{k})}{\partial t} \right)_{\text{elast}} = - \int \frac{d^3 k'}{(2\pi)^3} W_{\vec{k}\vec{k}'} \left[f(\vec{k}') (1 - f(\vec{k})) - f(\vec{k}) (1 - f(\vec{k}')) \right]. \quad (2.15)$$

Die experimentell gewonnenen Photoemissionsdaten repräsentieren einen Schnitt durch den k -Raum des Materials und die Verteilungsfunktionen kann damit üblicherweise nur in zwei gegenüberliegenden Richtungen $+k$ und $-k$ bestimmt werden. Die Modellierung der Boltzmann-Gleichung wird daher ebenfalls von einer Betrachtung des gesamten Dirac-Kegels als Funktion $f(\vec{k})$ auf zwei Verteilungsfunktion $f(+k)$ und $f(-k)$ reduziert. Die elastische Streuung wird als effektive Streuung eines Elektrons aus dem $+k$ in den gegenüberliegenden Zustand $-k$ aufgefasst. Die Streuung kann dabei aufgrund des entgegengesetzten Spins nicht direkt von $+k$ nach $-k$ erfolgen, sondern muss als Summe aufeinanderfolgender einzelner Streuprozesse entlang des Dirac-Kegels erfolgen. Für $W_{+k-k} = W_{-k+k} = 1/\tau_e$ als *effektive* Streurrate und unter

Berücksichtigung des Pauliverbots ergibt sich

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial f(k)}{\partial t} \right)_{\text{elast}} &= -W_{+k-k} f(k) (1 - f(-k)) + W_{-k+k} f(-k) (1 - f(+k)) \\ &= -\frac{f(k) - f(-k)}{\tau_e} \end{aligned} \quad (2.16)$$

als Beitrag der elastischen Streuung zur Boltzmann-Gleichung. Für $f(-k)$ errechnet sich der elastische Beitrag zur Boltzmann-Gleichung analog.

In der Modellierung der experimentellen Ergebnisse entfällt des Weiteren der Diffusionsterm der Boltzmann-Gleichung. Die durch die THz-Impulse hervorgerufene Störung ist aufgrund des Durchmessers des THz-Strahls über ungefähr einen Millimeter der Probe ausgedehnt. Die vom Abfrageimpuls aus einem Radius von $5 \mu\text{m}$ emittierten Elektronen unterliegen damit einem vernachlässigbaren räumlichen Gradienten.

Die vollständige Boltzmann-Gleichung zur Berechnung der Verteilungsfunktion im Dirac-Kegel des topologischen Isolators in zwei entgegengesetzten Richtungen $+k$ und $-k$ lautet damit

$$\frac{\partial f(k,t)}{\partial t} + \frac{e}{\hbar} E(t) \nabla_k f(k,t) = -\frac{f(k,t) - f(-k,t)}{\tau_e} - \frac{f(k,t) - f^0(k)}{\tau_i} \quad (2.17)$$

mit dem elektrischen Feld des THz-Impulses $E(t)$, der elastischen Streureate $\Gamma_e = 1/\tau_e$, der inelastischen Streureate $\Gamma_i = 1/\tau_i$ und der Fermi-Dirac-Verteilung f^0 .

Die Boltzmann-Gleichung hat in ihrer vollständigen Form ohne Näherungen aufgrund des Stoßintegrals keine allgemeine geschlossene Lösung [154] und wird daher üblicherweise numerisch gelöst. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Schritte und Algorithmen zur numerischen Integration der Gleichung 2.17 sind in Anhang C erläutert. Für einige Spezialfälle der Boltzmann-Gleichung kann jedoch auch eine geschlossenen Lösung angegeben werden. Wird neben der Diffusion im Ort in Gleichung 2.17 zusätzlich die elastische Streuung vernachlässigt, so kann für die vom äußeren Feld $E(t)$ getriebene Verteilung $f(k,t)$ in Relaxationszeitnäherung die geschlossene Lösung

$$f(k,t) = e^{-t/\tau_e} \left[\tilde{f}_k^0(-\infty, t) + \int_{-\infty}^t e^{t'/\tau_e} \frac{1}{\tau_e} \tilde{f}_k^0(t, t') dt' \right] \quad (2.18)$$

gefunden werden [155]. Hierzu wird die Fermi-Dirac-Verteilung im Gleichgewichtszustand

$$f_k^0(\mu) = \left\{ e^{(\hbar v_F |k| - \mu)/(kT)} + 1 \right\}^{-1} \quad (2.19)$$

als Funktion des chemischen Potentials in eine zeitabhängige Form unter Berücksichtigung der Wechselwirkung mit dem externen Feld

$$\tilde{f}_k^0(t_1, t_2) = f_k^0(\mu(t_1, t_2)) \text{ mit } \mu(t_1, t_2) = \mu_0 + v_F \int_{t_1}^{t_2} e \cdot E(t) dt \quad (2.20)$$

überführt. Aus der geschlossenen Form können das Verhalten der Verteilungsfunktion im Grenzfall sehr großer und kleiner Zerfallszeiten τ_e berechnet werden. Es gilt für

$$\begin{aligned}\tau_e \rightarrow 0 : \quad & f(k, t) = f_k^0(\mu) \text{ mit } \mu = \mu_0 + v_F e E(t) \tau_e \\ \tau_e \rightarrow \infty : \quad & f(k, t) = \tilde{f}_k^0(-\infty, t).\end{aligned}$$

In beiden Fällen entspricht die Verteilungsfunktion damit einer in der Energie verschobenen Fermi-Dirac-Verteilung. Für kleine Streuzeiten $\tau_e \rightarrow 0$ sind die Verschiebungen und die daraus resultierende Beschleunigung der Elektronen direkt proportional zu dem elektrischen Feld $E(t)$. Die Verschiebung im Impulsraum beträgt $\Delta k = (e/\hbar) E \tau_e$. Dies entspricht exakt der üblicherweise aus dem stationären Fall $\frac{\partial}{\partial t} f(\vec{k}, t) = 0$ für langsam variierende Felder hergeleiteten Verschiebung der Verteilungsfunktion. Für große Streuzeiten $\tau_e \rightarrow \infty$ ist die Verschiebung hingegen proportional zum Integral über das elektrische Feld. Die Beschleunigung ist damit wie im Falle ballistischen Transportes für periodische Anregungen um 90° phasenverschoben zur Amplitude des Feldes.

Die Betrachtung des Spezialfalls verschwindender elastischer Streuung zeigt insgesamt eine Verschiebung der Fermiverteilung für $\pm k_{\parallel}$ im Dirac-Kegel in entgegengesetzte Richtungen mit einer Phase von 0° bis 90° zwischen Auslenkung und treibendem Feld. Auch für den allgemeinen Fall der Kombination von elastischer und inelastischer Streuung ist daher eine Verschiebung der Verteilungsfunktionen zu erwarten, deren Stärke und Phasenlage mit den Zerfallszeiten der Elektronen skalieren wird.

2.4 Photoströme in topologischen Isolatoren

Die Spinpolarisation des Oberflächenzustands und die beobachtete lange Lebensdauer angeregter Elektronen machen topologische Isolatoren zu einer Materialklasse mit außergewöhnlichen Transporteigenschaften für elektrische Ströme. Fließt im Oberflächenzustand eines topologischen Isolators ein Strom, so ist dieser aufgrund der Spinpolarisation der Zustände zwangsläufig ebenfalls spinpolarisiert und man erwartet, aufgrund der verbotenen Rückstreuung, hohe mittlere freie Weglängen. Wird der Strom durch Einstrahlen von Licht erzeugt, spricht man allgemein von einem Photostrom. Durch Verwendung von Laserimpulsen zur Anregung der Photoströme in dieser Arbeit kann in einem zeitaufgelösten Experiment die Dynamik des Photostroms direkt in der Zeitdomäne untersucht werden. In den folgenden Abschnitten sollen für diese Untersuchungen die Grundlagen der Erzeugung von Photoströmen in topologischen Isolatoren vorgestellt und anschließend der Nachweis von Photoströmen durch Transportexperimente eingeordnet werden.

2.4.1 Prozesse zur Erzeugung von Photoströmen

Wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, ist ein Strom in einem Material immer mit einer asymmetrischen Verteilung von Ladungsträgern im k -Raum verbunden. Zur Erzeugung eines Photostroms muss daher mittels eines Anregungsimpulses eine asymmetrische Verteilung der angeregten Elektronen im k -Raum erzeugt werden. Für eine zuerst symmetrisch angeregte Elektronenverteilung kann dies zum Beispiel erreicht werden, wenn Streuprozesse im Material asymmetrisch sind. Auch ein Impulsübertrag der Photonen oder die Beschleunigung im elektrischen Feld kann die zunächst symmetrisch angeregten Elektronen verschieben. Ein Photostrom kann auch direkt durch die optische Anregung einer von Anfang an asymmetrischen Verteilung erzeugt werden. Auf diesem Weg ist sogar eine direkte Kontrolle über den Photostrom vorstellbar.

Eine solche Möglichkeit der direkten Erzeugung asymmetrischer Verteilungen angeregter Elektronen ist die Verwendung des Prinzips kohärenter Kontrolle [156] für optische Anregungen. In diesem Anregungsschema erfolgt eine kohärente Anregung aus einem besetzten in einen unbesetzten Zustand durch zwei phasenstarr gekoppelte Laserimpulse mit Photonenenergien $\hbar\omega_a$ und $\hbar\omega_a/2$. Die quantenmechanische Interferenz unterschiedlicher Anregungspfade ermöglicht eine Kontrolle über die Anregung der Elektronen an unterschiedlichen Positionen im k -Raum und es kann direkt eine asymmetrische Verteilung der Elektronen erzeugt werden. Durch die Variation der Phase zwischen den Laserimpulsen können die Richtung und die Stärke des resultierenden Photostroms kontrolliert werden. Mit dem Prinzip der kohärenten Kontrolle existiert eine auf viele Materialien anwendbare Methode zur Erzeugung von Photoströmen [13, 157–161]. In topologischen Isolatoren wurde dieser Anregungsmechanismus jedoch bisher nur in Ausnahmefällen theoretisch [162] und experimentell [163] untersucht, da in topologischen Isolatoren aufgrund der nicht-trivialen Symmetrie und der Spinpolarisation des Oberflächenzustands experimentell einfacher zugängliche Möglichkeiten der Erzeugung von Photoströmen existieren.

Abbildung 2.14 veranschaulicht die grundlegende Idee der Erzeugung eines Photostroms im Dirac-Kegel eines topologischen Isolators nach Anregung mit zirkular polarisiertem Licht. Das spin-momentum locking im linear dispergierenden Oberflächenzustand verknüpft Spin und Richtung des Parallelimpulses der Elektronen, bei gleicher Energie haben Elektronen mit entgegengesetztem Impuls auch einen entgegengesetzten Spin. Wird zirkular polarisiertes Licht unter einem Winkel auf die Probe gestrahlt, so werden, in Abhängigkeit der Helizität des Lichts Elektronen mit bestimmter Ausrichtung des Spins angeregt. In Abbildung 2.14 werden beispielhaft mit zirkular (σ^-) polarisiertem Licht nur Elektronen mit positivem k angeregt. Eine Anregung mit Licht der entgegengesetzten Helizität σ^+ würde nur Elektronen mit negativem k anregen. Die Anregung von Elektronen im Dirac-Kegel eines topologischen Isolators mit zirkular polarisiertem Licht führt damit zu einer asymmetrischen Verteilung im k -Raum

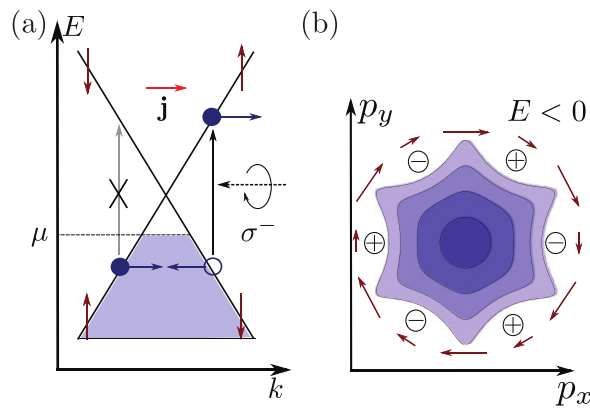


Abb. 2.14: (a) Skizze der grundlegenden Idee der Erzeugung von Photoströmen mit zirkular (σ^-) polarisiertem Licht. Die roten Pfeile symbolisieren die Ausrichtung des Spins. (b) Aufsicht auf den besetzten Oberflächenzustand mit dem Warping der Bandstruktur und der Ausrichtung (rote Pfeile) sowie der positiven/negativen k_z -Komponente (Kreise mit \pm) des Spins. (Abbildung aus [164])

und zur Ausbildung eines Photostroms. Die Richtung des Stroms kann über die Helizität der Anregung kontrolliert werden.

Die Erzeugung von Photoströmen in Materialien kann phänomenologisch drei verschiedenen Effekten zugeordnet werden [165]. Man unterscheidet Beiträge des zirkularen photogalvanischen Effektes, des linearen photogalvanischen Effektes und des Photon Drag Effektes. Der lineare und zirkulare photogalvanische Effekt können in zentrosymmetrischen Systemen aus Symmetriegründen nicht beobachtet werden. In den zentrosymmetrischen topologischen Isolatoren Sb_2Te_3 und Bi_2Te_3 können beide Effekte daher nur an der Oberfläche auftreten. Der zirkulare photogalvanische Effekt entspricht der in Abbildung 2.14 diskutierten Anregung und basiert damit auf einer Wechselwirkung des Laserimpulses mit dem Elektronenspin. Der zirkulare photogalvanische Effekt ist abhängig von der Helizität des verwendeten Lichts und verschwindet für linear polarisiertes Licht vollständig. Als Ursache des spin-unabhängigen linearen photogalvanischen Effektes werden asymmetrische Streuprozesse der Ladungsträger angesehen [165, 166]. Der lineare photogalvanische Effekt zeigt keine Abhängigkeit von der Helizität des Anregungsimpulses und verschwindet für zirkular polarisiertes Licht vollständig. Beide photogalvanischen Effekte können experimentell durch ihre Polarisationsabhängigkeit voneinander getrennt werden. Eine ausführliche Herleitung und Diskussion der einzelnen Beiträge zum zirkularen und linearen photogalvanischen Effekt in topologischen Isolatoren im Hinblick auf die Anregung mit Photonenenergien der Größenordnung der Bandlücke ist in [164] nachzulesen.

Der Photon Drag Effekt basiert auf einer direkten Übertragung des Impulses der Photonen auf die freien Ladungsträger und ist unabhängig vom Spin. Im Gegensatz zu dem photogalvanischen Effekt unterliegt der Photon Drag Effekt keinen Einschränkungen bezüglich der Zentrosymmetrie des Materials. Er ist damit als einziger der drei

diskutierten Ursachen von Photoströmen auch im Volumen der untersuchten topologischen Isolatoren beobachtbar. Der durch den Photon Drag Effekt hervorgerufene Photostrom erreicht ein Maximum um $\omega\tau = 1$. Für eine Lebensdauer der Elektronen innerhalb des Dirac-Kegels um $\tau = 1$ ps entspricht dies einer Frequenz ω des Anregungsimpulses im niedrigen THz-Bereich. In Transportexperimenten wurde für Frequenzen kleiner 5 THz ein substantieller Beitrag des Photon Drag Effektes zum Gesamtphotostrom beobachtet [166]. Bereits für Anregungen im Bereich um 50 THz ist der Beitrag des Photon Drag Effekt verschwindend gering [63]. Für die in Kapitel 5 durchgeführten Experimente mit MIR-Anregungsimpulsen wird daher davon ausgegangen, dass der Photon Drag Effekt nur einen geringen Beitrag zur beobachteten Asymmetrie liefert.

2.4.2 Experimentelle Beobachtung von Photoströmen

Photoströme in topologischen Isolatoren wurden experimentell in einer Reihe von Transportexperimenten, nach Anregung mit 1,55 eV [167–170] oder nach Anregung mit THz-Strahlung [63, 166], nachgewiesen. Prinzipbedingt kann in Transportexperimenten dabei nicht direkt zwischen Strömen an der Oberfläche und Strömen im Volumen des Materials unterschieden werden. Die Zuordnung der Komponenten erfolgt daher nur indirekt aus der Analyse des Gesamtphotostroms in Abhängigkeit der Helizität der Anregungsimpulse. In Abbildung 2.15 ist beispielhaft der Gesamtphotostrom für verschiedene Einfallswinkel eines zirkular polarisierten 1,55 eV Laserimpulses aus einem Transportexperiment an Bi_2Se_3 abgebildet. Für senkrechten Einfall (c) und Einfall entlang der Messrichtung (b) ist der Photostrom nur schwach helizitätsabhängig, für senkrechten Einfall verschwindet er nahezu ganz. Bei Einfall senkrecht zur Messrichtung ist auf einem intensiven, konstanten Untergrund ein in Abhängigkeit der Helizität stark modulierter Photostrom zu beobachten. Aus der Modulation werden durch Anpassung eines Modells (siehe unterer Teil von (a)) Beiträge des linearen (L_1) und zirkularen (C) photogalvanischen Effektes im Oberflächenzustand und des Photon Drag Effektes (L_2 , D) im Volumen identifiziert.

Die Zuordnung eines Photostroms zum topologisch geschützten Oberflächenzustand allein aus der Helizitätsabhängigkeit in Transportexperimenten ist insbesondere bei Verwendung von Photonenenergien deutlich oberhalb der Bandlücke kritisch. Aus zeitaufgelösten 2PPE Experimenten [14] ist bekannt, dass der Dirac-Kegel für hohe Photonenenergien, wie zum Beispiel 1,55 eV, nahezu ausschließlich durch eine indirekte Befüllung aus höher liegenden Volumenzuständen besetzt wird. Aufgrund der Streuprozesse ist dabei eine signifikante Reduktion einer in den Volumenbändern erzeugten asymmetrischen Besetzung zu erwarten. Für Anregung mit sichtbaren Impulsen einer Photonenenergie von 2,55 eV konnte im Rahmen dieser Arbeit mit zeitaufgelöster 2PPE direkt gezeigt werden [23], dass aufgrund der indirekten Befüllung keine asymmetrische Besetzung im topologisch geschützten Oberflächenzustand existiert.

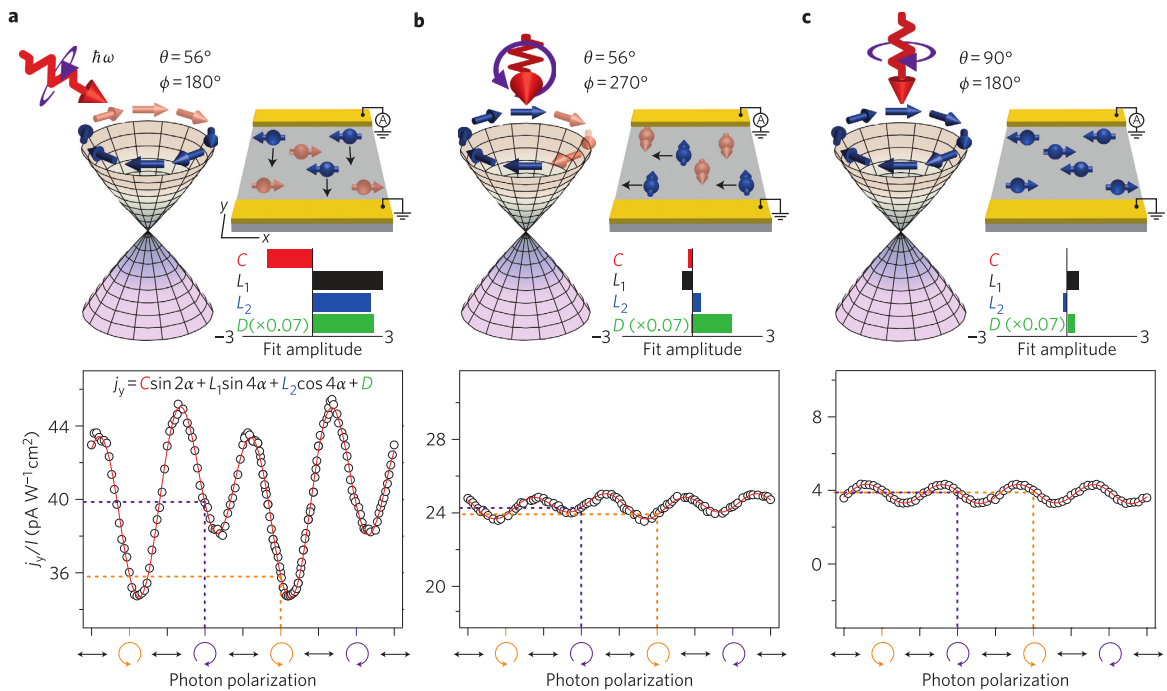


Abb. 2.15: Photostrom in Bi_2Se_3 für unterschiedliche Einfallsrichtungen (a-c) als Funktion der Helizität des 1,55 eV Anregungslaserimpulses. (Abbildung aus [167])

Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen haben das Ziel, einen Photostrom im topologischen Oberflächenzustand zu erzeugen und direkt zu beobachten. Die Verwendung der zeitaufgelösten 2PPE stellt dabei einen großen Vorteil gegenüber klassischen Transportexperimenten dar, da es mit ihr möglich ist, die Beiträge der Volumen- und Oberflächenzustände direkt im k -Raum voneinander zu trennen. Die Erzeugung des Photostroms selbst erfolgt in zwei unterschiedlichen Varianten. Einerseits wird nach Anregung mit MIR-Impulsen mit Photonenenergien unterhalb der Bandlücke über den zirkularen und linearen photogalvanischen Effekt eine asymmetrische Besetzung im Dirac-Kegel erzeugt (Kapitel 5). In der zweiten Variante wird durch Anregung mit intensiven THz-Impulsen eine Intrabandbeschleunigung im Oberflächenzustand getrieben und damit ein Photostrom im Dirac-Kegel erzeugt.

Kapitel 3

Experiment

In diesem Kapitel werden die experimentellen und technischen Grundlagen der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente vorgestellt. Neben der Beschreibung der Ultrahochvakuumkammer ZAPES I (Akronym für **Z**eitaufgelöste **P**hoto-**E**lektronen**S**pektroskopie) und der für die Photoemissions- und THz-Experimente verwendeten Lasersysteme wird insbesondere die Präparation und Charakterisierung der topologischen Isolatoren diskutiert.

Die im Verlauf dieser Doktorarbeit neu entworfene und aufgebaute UHV-Kammer ZAPES III wurde bisher nicht für die Experimente an topologischen Isolatoren genutzt, konnte aber im Rahmen von Untersuchungen an 2D-Materialien bereits ihre Fähigkeiten unter Beweis stellen [137]. Die technischen Details der ZAPES III und der speziell für diese Kammer geschriebenen Messsoftware sind im Anhang A aufgeführt.

3.1 Ultrahochvakuumkammer ZAPES I

Das ZAPES I Experiment ist eine speziell für die Photoelektronenspektroskopie von Elektronen mit kinetischen Energien im Bereich weniger Elektronenvolt gebaute Ultrahochvakuumkammer. Die Kammer wurde von W. Berthold im Rahmen seiner Doktorarbeit [171] konstruiert und aufgebaut. Eine grundlegende Erweiterung der experimentellen Möglichkeiten erfolgte durch den Austausch des verbauten Channeltron-Detektors mit einem hemisphärischen 2D-Detektor durch M. Rohleder [172].

Die ZAPES I Kammer ist eine mit μ -Metall ausgekleidete Vakuumapparatur. Sie ermöglicht auf zwei Messebenen neben der Präparation und Charakterisierung von Oberflächen die Messung von Photoemissionsspektren mit zwei verschiedenen Detektoren. Am aus Edelstahl gefertigten Pumpensumpf befindet sich eine Turbomolekularpumpe (Balzers TMU 520) und eine Titansublimationspumpe (Balzers USP035), das Vorvakuum wird von einer Membranpumpe erzeugt. Die Kombination beider Pumpen ermöglicht nach dreitägigem Ausheizen der Kammer bei $\approx 150^\circ\text{C}$ einen Basisdruck von $5 \cdot 10^{-11}$ mbar. Die untere Messebene beinhaltet ein in dieser Arbeit nicht genutztes Flugzeitspektrometer [173]. Zur Präparation und Charakterisierung der Probe sind in der oberen Messebene ein 3-Gitter LEED (Omicron Spectaleed) zur Untersuchung der atomaren Struktur der Oberfläche, ein Mikrokapillardoser zur gezielten Absorption

von Gasen auf der Probe, ein Quadrupolmassenspektrometer (Balzers QMG 125) zur Restgasanalyse und eine Sputterkanone (Varian Modell 981-2046) zur Präparation der Oberfläche eingebaut. Schräg oberhalb der Messebene befindet sich eine Röntgenröhre (VG Microtec XR3E2) mit Aluminium und Magnesium Anode zur chemischen Analyse der Probe mittels Röntgenphotoelektronenspektroskopie (engl.: *X-ray photoelectron spectroscopy*, *XPS*). Der Mikrokapillardoser ist über ein Feindosierventil an ein separat gepumptes, mit O₂, CO und Ar gefülltes Dosiersystem angeschlossen.

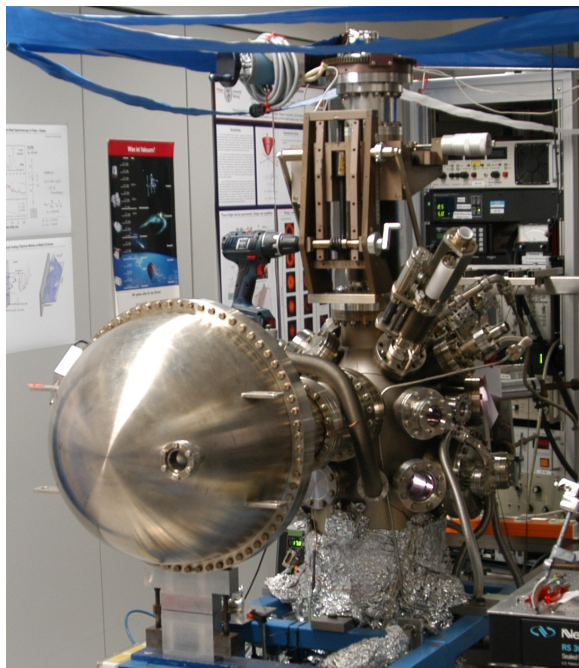


Abb. 3.1: Die UHV-Kammer ZAPES I mit dem hemisphärischen Detektor Phoibos 150 (links) und der Röntgenröhre (Mitte). Im oberen Bildbereich ist ein Teil des Helmholtz-Spulen Systems (blaue Kabel) zu erkennen.

In der oberen Messkammer befindet sich ein hemisphärischer Elektronenanalysator (Specs Phoibos 150) mit einem 2D Channelplate Detektor. Mit diesem können je nach gewähltem Linsenmodus sowohl winkelintegrierte Spektren bei hohen kinetischen Energien für XPS Untersuchungen als auch winkelaufgelöste Messungen bei niedrigen kinetischen Energien für 2PPE Untersuchungen durchgeführt werden. Der Detektor verfügt über einen Winkelakzeptanzbereich von $\pm 13^\circ$ mit einer Winkelauflösung von $\approx 0,42^\circ$ bei 10 eV Passenergie und 1,7 eV kinetischer Energie [174] im für winkelaufgelöste Messungen verwendeten Linsenmodus "*Wide Angle Mode*". Für Photoelektronen mit kinetischen Energien von wenigen Elektronenvolt entspricht dieser Winkelbereich einem maximalen Parallelimpuls der Elektronen um $0,2 \text{ \AA}^{-1}$. Die Energieauflösung des Experimentes ist in 2PPE Experimenten typischerweise durch die Energiebreite der kurzen Laserimpulse bestimmt und liegt für die Spektren in dieser Arbeit bei $\approx 40 \text{ meV}$ für mit flüssigem Stickstoff gekühlte Proben ($T=78 \text{ K}$) und bei Verwendung von Femtosekundenimpulsen. Die gesamte Kammer ist zur Reduzierung des

durch Flansche und Linse des Detektors eindringenden Erdmagnetfeldes zusätzlich zum μ -Metall-Schild in eine Anordnung von drei Helmholtz-Spulen eingeschlossen. Mit diesen wird das Erdmagnetfeld in allen drei Raumrichtungen unabhängig voneinander auf $< 0,5 \mu\text{T}$ reduziert [171].

Die Proben sind auf Omicron Probenplatten aufgeklebt und werden austauschbar auf einem Kryostaten innerhalb der Kammer gehalten. Der Kryostat ist sowohl mit flüssigem Helium als auch flüssigem Stickstoff kühlbar, die auswechselbaren Proben erreichen dabei ohne zusätzliche thermische Abschirmung Temperaturen $T < 40 \text{ K}$ beziehungsweise $T = 78 \text{ K}$. Für die genaue Positionierung innerhalb der Kammer steht ein x, y, z, ϕ -Manipulator (U.H.V. Instruments) mit differentiell gepumpter Drehdurchführung zur Verfügung.

Die Präparation der topologischen Isolatoren (siehe Abschnitt 3.4) erfordert eine Möglichkeit zum schnellen Wechsel der Proben. Hierzu wurde in der oberen Messebene ein durch ein Plattenventil getrenntes Transfersystem (Basisdruck $< 5 \cdot 10^{-9} \text{ mbar}$) mit eigener Turbomolekularpumpe (Pfeiffer TMU 065) angebaut. Mit diesem ist es möglich die Probe innerhalb weniger Minuten zu wechseln, ohne das Vakuum der Hauptkammer zu verschmutzen.

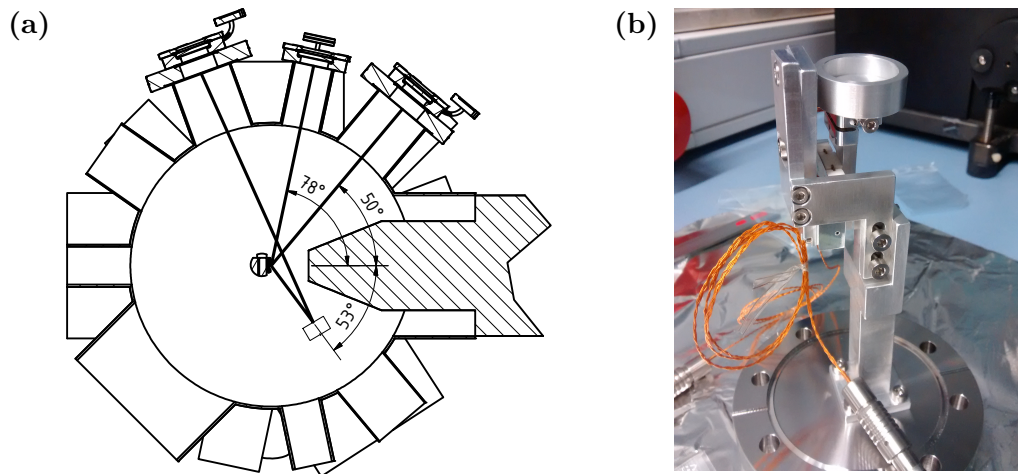


Abb. 3.2: (a) Ein Schnitt durch die obere Messebene der ZAPES I Kammer. Der Detektor ragt von rechts in die Kammer, die Probe liegt in der Kammermitte 40 mm vor der Elektronenlinse. Eingezeichnet sind die beiden direkten Strahlengänge unter 78° und 50° Einfallswinkel sowie der in der Kammer fokussierte Strahlengang unter 53° . (b) Die auf einem CF63 Flansch montierte Spiegelhalterung mit den elektrischen Zuleitungen der Piezotische. Der Spiegel wird in den oberen Zylinder eingesetzt.

Die Einkopplung der Laserimpulse in die Kammer kann unter drei verschiedenen Einfallswinkeln bezüglich der Probe erfolgen. Für die Anregung mit VIS- und MIR-Laserimpulsen erfolgt die Einkopplung durch differentiell gepumpte CaF_2 -Fenster unter 50° und 78° Einfallswinkel (siehe Abbildung 3.2 (a)). Die Fokussierung findet dabei außerhalb der Vakuumkammer mit Spiegeln ($f = 500 \text{ mm}$) statt. Im Rahmen der

Experimente mit THz-Impulsen war die Fokussierung der THz-Impulse mit Brennweiten kleiner 100 mm notwendig. Der Abstand zwischen Spiegel und Probe liegt damit deutlich unter dem Abstand Fenster zu Probe und eine Fokussierung außerhalb der Kammer ist damit nicht möglich. Zur Lösung dieses Problems wurde eine UHV kompatible Spiegelhalterung entworfen und gebaut, die eine Fokussierung in der Kammer mit einem 1 Zoll Spiegel mit 75 mm Brennweite erlaubt (siehe Abbildung 3.2 (b)). Der Spiegel ist dazu in einem piezogetriebenen Spiegelhalter (SmarAct STT-12.7-UHV-NM) befestigt. Der Fokuspunkt kann mit diesem von außerhalb der Kammer auf der Probe in den Fokuspunkt des Analysators verfahren werden. Die Optimierung des Spotdurchmessers erfolgt durch Verschieben des Spiegels entlang des Laserstrahls auf einem ebenfalls piezogetriebenen Verschiebetisch (SmarAct SLC-2430-W-UHV-NM).

3.2 Lasersystem zur Anregung mit durchstimmbaren Photonenenergien

Das Lasersystem zur Erzeugung durchstimmbarer ultrakurzer Laserimpulse für die Untersuchung topologischer Isolatoren mit sichtbaren und infraroten Wellenlängen in Marburg basiert auf einem regenerativen Verstärkersystem mit Repetitionsraten bis zu 500 kHz. Der Vorteil des hier verwendeten Verstärkersystems liegt in der unabhängigen Durchstimbarkeit der Laserimpulse für die Anregung und Photoemission in Verbindung mit einer hohen Anregungsdichte. Für die Photoemission aus dem topologischen Oberflächenzustand ist eine Photonenenergie knapp oberhalb der Austrittsarbeit Φ des Materials empfehlenswert, um einerseits den Untergrund durch Einphotonen-Photoemission möglichst gering zu halten und andererseits den gesamten Dirac-Kegel knapp oberhalb der Fermienergie untersuchen zu können. Für die Anregung des Oberflächenzustands konnte im Rahmen dieser Arbeit eine starke Abhängigkeit der Dynamik von der verwendeten Wellenlänge des Anregungsimpulses gefunden werden. Diese Ergebnisse und die Entdeckung einer direkten optischen Anregung innerhalb des Dirac-Kegels wären ohne die Durchstimbarkeit der Anregungswellenlänge nicht möglich gewesen.

Der optische Aufbau zur Erzeugung durchstimmbarer Laserimpulse beginnt mit der Erzeugung von Femtosekundenimpulsen in einem modengekoppelten Titan Saphir Oszillator (Coherent Vitara) mit 80 MHz Repetitionsrate. Die Impulse werden in einem *Stretcher* zeitlich aufgeweitet und anschließend in einem regenerativen Verstärker (Coherent RegA 9040 HP) verstärkt. Die resultierenden Laserimpulse werden in einem Gitterkompressor auf ≈ 40 fs zeitlich komprimiert. Die verstärkten Impulse erreichen Pulsenergien von $10 \mu\text{J}$ bei 100 kHz Repetitionsrate und können je nach Anwendungsfall zur Erzeugung von Laserimpulsen unterschiedlicher Photonenenergie genutzt werden. Hierzu stehen zusätzlich zu zwei optisch parametrischen Verstärkern (engl.: *optical parametric amplification*, *OPA*) auch ein in dieser Arbeit nicht genutztes System

zur Erzeugung höherer Harmonischer zur Verfügung [175]. Die OPA werden jeweils mit der Hälfte der Ausgangsleistung des Verstärkers gepumpt und erzeugen durchstimmbare Laserimpulse im sichtbaren (VIS) (20 mW, 480-700 nm, Coherent OPA 9450) oder nahinfraroten (NIR) Wellenlängenbereich (NIR, 40 mW, 1200-2400 nm, Coherent OPA 9850). Die sichtbaren Laserimpulse erreichen nach dem Durchlaufen eines Prismenkompressors Pulslängen von typischerweise 40 fs und können zum Anregen der Proben oder nach nochmaliger Verdopplung (engl.: *second harmonic generation*, *SHG*) in einem β -Bariumborat (BBO) Kristall als ultraviolette (UV) Laserimpulse zur Photoemission genutzt werden. Die mittlere Leistung der UV-Laserimpulse wird typischerweise auf 100 μ W begrenzt, um Raumladungseffekte in der Photoemission zu unterdrücken. Die durchstimmbaren infraroten Laserimpulse des zweiten OPA können direkt für 2PPE Experimente genutzt werden oder ermöglichen es durch Differenzfrequenzerzeugung (DFG) Laserimpulse im Mittelinfrarot (MIR) Wellenlängenbereich von 2,5-10 μ m zu erzeugen (typisch 4 mW bei 3,5 μ m, Coherent DFG 9850).

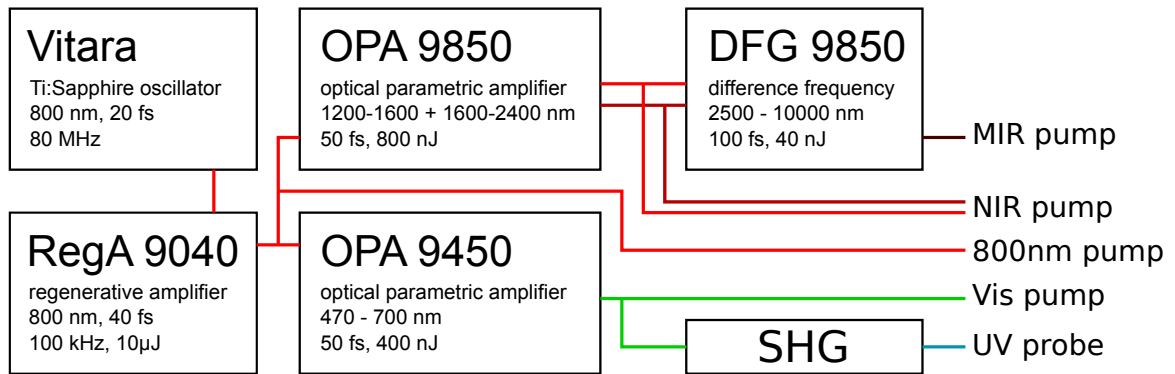


Abb. 3.3: Schematischer Aufbau des Verstärker Lasersystems mit zwei unabhängig voneinander durchstimmbaren optisch parametrischen Verstärkern zur Erzeugung verschiedener Wellenlängen für die optische Anregung der Proben und die anschließende Photoemission.

Die Laserstrahlen werden über Metallspiegel zur Kammer geführt und mit $f = 500$ mm Spiegeln durch CaF_2 -Fenster auf die Probe fokussiert, der Durchmesser des Laserstrahls auf der Probe beträgt rund 100 μ m. Bei Verwendung sichtbarer Laserimpulse zur Anregung der Probe werden die UV- und VIS-Impulse kollinear über den gleichen Spiegel unter 78° Einfallswinkel auf die Probe fokussiert (siehe Abbildung 3.2 (a)). Die IR-Impulse werden unabhängig von den UV-Impulsen fokussiert und entweder durch das gleiche oder ein benachbartes Fenster (Einfallswinkel 50°) auf die Probe geführt. Die zeitliche Verzögerung zwischen den Anrege- und Abfrageimpulsen wird mit einer motorisierten Verzögerungsstrecke im Anregungslaserstrahl erzeugt.

Zur Untersuchung des linearen und zirkularen Dichroismus stehen Zero-Order $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Platten für alle Anregungswellenlängen zur Verfügung. Die Wellenplatten werden nach dem fokussierenden Spiegel direkt vor dem Vakuumfenster der Kammer positioniert, die Polarisation wird daher nicht durch unnötige Reflexionen beeinflusst.

3.3 Lasersystem zur Erzeugung von THz-Impulsen

Photoemissionsuntersuchungen an topologischen Isolatoren nach Anregung mit THz-Impulsen mit subzyklen Zeitauflösung erfordern sowohl die Erzeugung kurzer Laserimpulse mit Photonenenergien über der Austrittsarbeit der Probe als auch die Erzeugung intensiver phasenstarrer THz-Impulse. Diese Kombination stellt höchste technische Anforderungen an das verwendete Lasersystem. Im Rahmen einer Kooperation wurde von Prof. Dr. R. Huber eine THz-Quelle in Laboren in Regensburg für diese Experimente zur Verfügung gestellt. Das bestehende Lasersystem wurde im Rahmen der Zusammenarbeit für das Photoemissionsexperiment um eine Möglichkeit zur Erzeugung von UV-Laserimpulsen erweitert. Der folgende Abschnitt präsentiert kurz die Erzeugung der UV-Impulse und die für diese Arbeit wichtigen Eigenschaften der THz-Quelle, für eine detaillierte Beschreibung des THz-Aufbaus sei auf [176] verwiesen.

Die Erzeugung der THz-Impulse erfolgt durch optische Gleichrichtung von 807 nm Impulsen in LiNbO_3 . Die durch diesen Prozess erzeugten THz-Impulse sind inhärent phasenstarr, auch bei Verwendung nicht phasenstabiler Infrarotimpulse. Im Vergleich zur Erzeugung von THz-Impulsen durch Differenzfrequenzerzeugung zwischen Infrarotimpulsen ist das Frequenzspektrum zu deutlich niedrigeren Frequenzen verschoben. Die Laserimpulse werden aus einer Kombination eines regenerativen Verstärkers (Coherent Legend Elite Duo) mit zusätzlich nachgeschaltetem Single-Pass-Verstärker erzeugt. Bei einer Repetitionsrate von 3 kHz erreicht das System Pulsenergien von 5,5 mJ, die Impulsdauer liegt bei 33 fs.

Ein Teil der Gesamtintensität wird zur Erzeugung der THz-Impulse in LiNbO_3 genutzt. Dieses Material zeichnet sich durch eine hohe optische Nichtlinearität und eine sehr hohe Zerstörschwelle aus. Zur effizienten Erzeugung intensiver THz-Impulse müssen die Gruppengeschwindigkeiten der Fundamentalen und die Phasengeschwindigkeit der erzeugten Welle im Material gleich sein, die „Phasenanpassung“ des Systems muss gewährleistet sein. Für LiNbO_3 unterscheiden sich diese Geschwindigkeiten um ungefähr einen Faktor zwei. Um das Material trotzdem zur THz-Erzeugung nutzen zu können, wird ein nicht kollinear Aufbau mit verkippten Phasenfronten (engl.: *tilted pulse front*, *TPF*) der Fundamental gewählt [177]. Der optische Aufbau ist in 3.4 (a) skizziert. Nach Verkleinerung des Strahldurchmessers in einem reflektierenden Teleskop werden durch ein Gitter (G) die Phasenfronten des Strahls verkippt. Zwei Zylinderlinsen (CL) fokussieren den Strahl in den mit flüssigem Stickstoff gekühlten LiNbO_3 Kristall. Die lineare Polarisierung und die Intensität der THz-Impulse kann durch zwei Drahtgitterpolarisatoren (engl.: *wire grid polarizer*) beliebig eingestellt werden. Die entstehende THz-Strahlung besitzt eine Pulsenergie von 1 μJ . Durch elektrooptisches Abtasten kann der zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes des THz-Impulses be-

stimmt werden. In 3.4 (b) ist das Feld des THz-Transienten nach Transmission durch das Fused Silica Kammerfenster dargestellt. Der phasenstarre zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes ist von genau einem Maximum dominiert, im Vergleich zu diesem besitzen die Nebenminima eine um 50% deutlich reduzierte Feldstärke. Das Spektrum des THz-Impulses aus der Fouriertransformation des transienten elektrischen Feldes ist als Inset in die Abbildung eingefügt. Die spektrale Intensität steigt von 0 THz beginnend bis zur maximalen Intensität bei 0,5 THz monoton an. Die Amplituden der einzelnen Frequenzkomponenten nehmen dann von 0,5 THz an wieder ab und zeigen bei knapp über 1 THz ein lokales Maximum. Oberhalb von 2 THz ist nahezu keine spektrale Intensität mehr vorhanden.

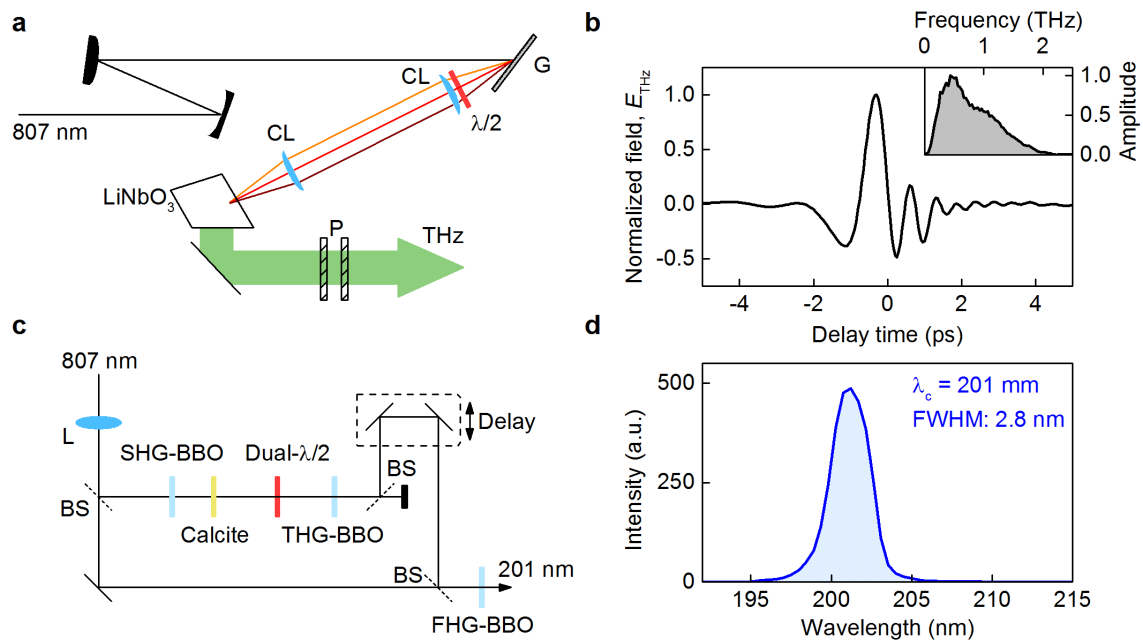


Abb. 3.4: (a) Schematischer Aufbau zur Erzeugung von THz-Impulsen mit einer *tilted pulse front* Quelle in LiNbO₃. (b) Elektrooptisch detektierte THz-Wellenform nach Transmission durch das Fused Silica Einkoppelfenster der Vakuumkammer. Inset: Fouriertransformation des Spektrums in (b). (c) Schematischer Aufbau zur Erzeugung der vierten Harmonischen als UV-Abfrageimpuls. (d) Spektrum der in (c) erzeugten UV-Impulse.

Die Erzeugung der Abfrageimpulse mit Photonenenergien größer $\Phi = 5 \text{ eV}$ erfolgt, wie in Abbildung 3.4 (c) schematisch dargestellt, durch schrittweises Erzeugen der vierten Harmonischen des 807 nm Laserlichts. Ein geringer Teil der Ausgangsleistung des Verstärkers wird mit einer $f = 1 \text{ m}$ Linse (L) fokussiert. Ein Strahlteiler (engl.: *beamsplitter*, BS) teilt 90% der Leistung zur Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem BBO Kristall (SHG-BBO) ab. Nach Ausgleich des Zeitversatzes von Fundamentaler und zweiter Harmonischer in einer Calcit-Platte und Drehen der Polarisation der zweiten Harmonischen um 90° wird in einem weiteren Kristall (THG-BBO) die dritte Harmonische erzeugt (engl.: *third harmonic generation*, THG). Ein Strahlteiler teilt

die dritte Harmonische ab, diese wird anschließend mit der Fundamentalen in einem weiteren Kristall (FHG-BBO) zur Erzeugung der vierten Harmonischen *fourth harmonic generation, FHG*) mit Hilfe einer Verzögerungsstrecke (Delay) zeitlich überlagert. In einem Prismenkompressor wird die erzeugte vierte Harmonische von der Fundamentalen und der dritten Harmonischen getrennt, sowie die Dispersion des UHV-Fensters für die vierte Harmonische vorkompensiert. Das Spektrum der erzeugten vierten Harmonischen ist in Abbildung 3.4 (d) gezeigt. Es ist um 201 nm zentriert und aus der spektralen Breite $\lambda_c = 2,8 \text{ nm}$ ergibt sich im Fourierlimit eine Impulsdauer von 22 fs.

Der THz-Strahl und die vierte Harmonische werden kollinear überlagert und in die Kammer geleitet. In der Kammer werden beide von einem 1 Zoll Aluminiumspiegel ($f=75 \text{ mm}$) auf die Probe fokussiert (siehe Abbildung 3.2 (b)). Durch Verfahren des Spiegels entlang des Strahls kann der Fokuspunkt des THz-Impulses auf der Probe optimiert werden. Die Verzögerung zwischen den THz- und den UV-Impulsen wird durch eine mechanische Verzögerungsstrecke im THz-Strahlengang kontrolliert.

Neben der Kontrolle der Polarisierung der THz-Impulse durch die Polarisatoren ist zusätzlich eine Möglichkeit zum Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes der THz-Transienten in den Strahlengang integriert. Es handelt sich dabei um ein Bauteil, das bei konstanter optischer Weglänge die überlagerten Strahlen entweder über drei oder vier Spiegel führt. Bei Verwendung von drei Reflexionen wird das elektrische Feld durch einen π Phasensprung weniger im Vergleich zum Aufbau mit vier Reflexionen invertiert. Der grundsätzliche Feldverlauf bleibt dabei unverändert. Das Vorzeichen der vierten Harmonischen wird in gleicher Art und Weise ebenfalls invertiert. Da die UV-Impulse nicht phasenstabilisiert sind, hat der Wechsel des Vorzeichens keinen Einfluss auf den Photoemissionsprozess.

3.4 Probenpräparation und Charakterisierung

Der folgende Abschnitt stellt die grundlegende Vorgehensweise zur Oberflächenpräparation und Charakterisierung topologischer Isolatoren vor. Zuerst werden die chemische Charakterisierung der Proben mit Röntgenphotoelektronenspektroskopie (engl.: *X-ray photoelectron spectroscopy, XPS*) und die Bestimmung der Kristallstruktur und der Ausrichtung durch Beugung niederenergetischer Elektronen (engl.: *low-energy electron diffraction, LEED*) vorgestellt. Es folgt eine Zusammenfassung der Präparationsmethoden zum Erzeugen sauberer und geordneter Oberflächen für Dünnschicht- und Volumenkristallproben topologischer Isolatoren.

Röntgenphotoelektronenspektroskopie

Zur Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der untersuchten Materialien und ihrer Adsorbate wurden XPS Untersuchungen durchgeführt. In der Röntgenphotoelektronenspektroskopie werden durch Anregung mit hochenergetischen Photonen kern-

nahe Elektronen der untersuchten Materialien photoemittiert. Die Messung der charakteristischen kinetischen Energie erlaubt es, qualitative und quantitative Aussagen über die Zusammensetzung des untersuchten Materials zu treffen.

An der ZAPES I Kammer ist zu diesem Zweck eine Röntgenquelle (VG Microtec XR3E2) mit Mg- und Al-Anode verbaut. Bei Nutzung der Al-Anode beträgt die dominante Photonenenergie der emittierten Röntgenstrahlung $E_{\text{Al}}=1486.7\text{ eV}$ der Al- K_{α} Linie, für Mg entsprechend $E_{\text{Mg}}=1253.7\text{ eV}$ der Mg- K_{α} Linie. Die Untersuchung einer Probe mit verschiedenen Photonenenergien erlaubt die Zuordnung der Linien zu kernnahen Elektronen (kinetische Energie verschiebt in Abhängigkeit der Photonenenergie) oder Augerprozessen (kinetische Energie bleibt konstant). Die Abhängigkeit des Wechselwirkungsquerschnitts von der Photonenenergie spielt für die hier durchgeführten Experimente keine Rolle.

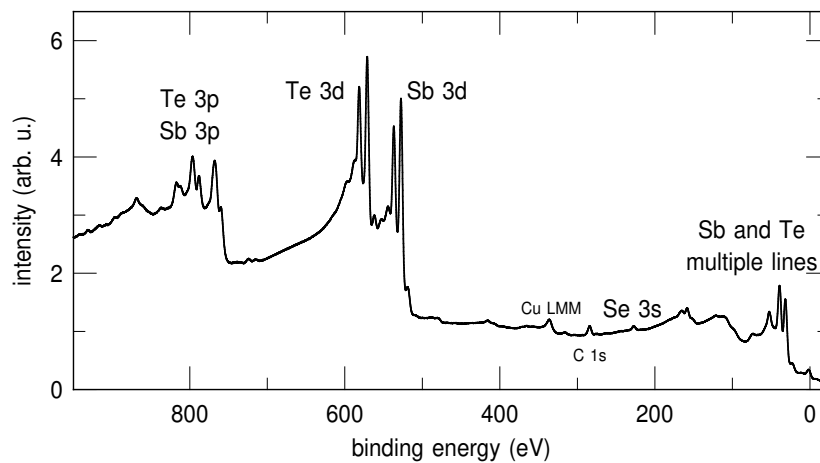


Abb. 3.5: XPS Spektrum der Oberfläche von $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$. Für die Messung wurde die Mg-Anode verwendet. Die intensivsten Linien der drei einzelnen Elemente sind im Spektrum zusammen mit ihrer spektroskopischen Zuordnung gekennzeichnet.

Abbildung 3.5 zeigt beispielhaft das Photoemissionsspektrum einer $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ Oberfläche nach Photoemission mit einer Photonenenergie von 1253.7 eV . Die intensiven Linien im Spektrum können elektronischen Zuständen der einzelnen Elemente zugeordnet werden. Aus dem Amplitudenverhältnis der Te 3d- und Sb 3d-Linien lässt sich im Vergleich zu Messungen an Sb_2Te_3 die Stöchiometrie des ternären Materials im Rahmen der experimentellen Unsicherheiten bestätigen. Die geringe Intensität der Se 3s Linie im Vergleich zu den Sb- und Te-Linien ist eine Folge der unterschiedlichen Anregungsquerschnitte der verschiedenen Elemente. Das deutlich leichtere Se (Ordnungszahl 34) hat einen um den Faktor acht kleineren Sensitivitätsfaktor im Vergleich zu Sb (Ordnungszahl 51) und Te (Ordnungszahl 52) [178]. Die im Spektrum sichtbare Cu LMM Auger-Linie kann dem aus Kupfer gefertigten Probenhalter zugeordnet werden. Die C 1s-Linie ist ein Zeichen für die Adsorption von Verunreinigungen auf der Oberfläche.

Beugung niederenergetischer Elektronen

Die Beugung niederenergetischer Elektronen gehört zu den Standardmethoden der Oberflächenanalyse und wird in dieser Arbeit zur Bestimmung der Kristallorientierung verwendet. In Abbildung 3.6 ist das Beugungsbild der $\text{Sb}_{1,4}\text{Bi}_{0,6}\text{Te}_3$ Oberfläche für Elektronen mit 75 eV kinetischer Energie gezeigt. Aufgrund der gleichen Kristallstruktur entsprechen die LEED Bilder der anderen untersuchten Materialien dem hier gezeigten qualitativ. Die sechszählige Symmetrie der obersten Lage ist im Beugungsbild deutlich zu erkennen. Die dreizählige Symmetrie der Oberfläche ist zusätzlich in der unterschiedlichen Intensität der um 60° zueinander verdrehten Dreiecke angedeutet. Je nach gewählter Elektronenenergie ist die Dreizähligkeit im LEED Bild unterschiedlich stark ausgeprägt.

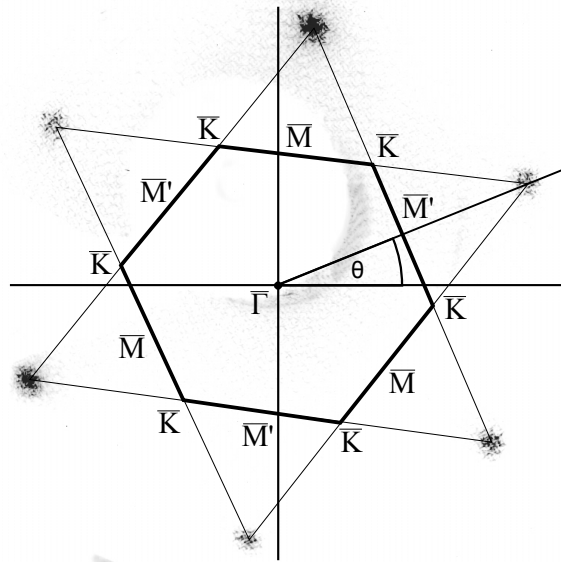


Abb. 3.6: LEED Beugungsbild der $\text{Sb}_{1,4}\text{Bi}_{0,6}\text{Te}_3$ Oberfläche bei 75 eV Elektronenenergie. Die Lage der Hochsymmetriepunkte der Oberfläche $\bar{\Gamma}$, \bar{K} und \bar{M} kann aus dem Beugungsbild in Bezug zur Einfallsrichtung des Laserstrahls (horizontale Linie) und dem Eingangsspalt des Elektronendetektors (vertikale Linie) bestimmt werden.

Die Orientierung des Kristalls erfolgt durch die Konstruktion der ersten Brillouin-Zone im LEED Bild. Der Mittelpunkt des entstandenen Sechsecks entspricht dem Hochsymmetriepunkt $\bar{\Gamma}$, die Eckpunkte \bar{K} . Zu den Mittelpunkten der Kanten gehören entsprechend der dreizähligen Symmetrie alternierend \bar{M} und \bar{M}' . Die Einfallsebene des Lasers liegt horizontal im Beugungsbild, der Eingangsspalt des Elektronendetektors liegt senkrecht dazu. Der Azimutalwinkel θ gibt die Orientierung der Probe bezüglich der Einfallsebene des Lasers an. Aus den LEED Bildern kann θ mit einer Unsicherheit von $\pm 0,5^\circ$ bestimmt werden. Für $\theta = 0^\circ$ fällt der Laser entlang $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} und damit in einer der Spiegelebenen der Oberfläche ein, die Detektion erfolgt entsprechend entlang $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} .

Oberflächenpräparation topologischer Isolatoren

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten topologischen Isolatoren lassen sich in Volumenkristalle und Dünnschichtproben unterscheiden. Die Präparation der Oberflächen unterscheidet sich zwischen beiden Gruppen fundamental. Für die Dünnschichtproben, mit Materialdicken typischerweise im Bereich weniger 10 nm, darf bei der Entfernung der Verunreinigungen kein wesentlicher Abtrag des topologischen Isolators erfolgen, da die elektronische Struktur [47, 79, 83] und die Dotierung [79, 179, 180] empfindlich von der Materialdicke abhängen. Für Volumenkristalle ist die Dicke der Proben so groß, dass für die Entfernung der Verunreinigungen an der Oberfläche ein Abtragen eines Teils des topologischen Isolators keine Veränderungen der Bandstruktur zur Folge hat.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Dünnschichtproben wurden mit Molekularstrahlepitaxie [181] hergestellt und wurden freundlicherweise von G. Mussler zur Verfügung gestellt. Die Volumenkristalle wurden von H. Bentmann und F. Reinert (Sb_2Te_3), E. V. Chulkov ($\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$) sowie von K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko und A. Kimura (Sb_2Te_3 , Bi_2Te_3 und $(\text{Sb}_{1-x}\text{Bi}_x)_2\text{Te}_3$) zur Verfügung gestellt.

Die Präparation der untersuchten Dünnschichtproben erfolgte auf das jeweilige Materialsystem angepasst sowohl chemisch als auch mit klassischen Methoden der Oberflächenphysik. Für das Material $\text{Sb}_2\text{Te}_3/\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Si}(111)$ (BST 514, Schichtdicken 25 nm / 10 nm / Substrat) wurde die Oberfläche nach dem Transport an Luft durch Heizzyklen (10 Minuten bei 150-200°C) vorbereitet, es konnte jedoch keine Struktur in den Photoemissionsspektren erreicht werden. In Zusammenhang mit der in den XPS-Spektren beobachteten Kohlenstofflinie lässt sich darauf schließen, dass die absorbierten Verunreinigungen nicht entfernt werden konnten.

Um die beobachteten Verunreinigungen des topologischen Isolators durch Adsorbate aus der Luft zu verhindern, sind Versuche mit verschiedenen, im Vakuum aufgetragenen Deckschichten auf dem zu untersuchenden Material durchgeführt worden. Die zusätzlich aufgetragenen Deckschichten sollen dabei rückstandsfrei zusammen mit den Adsorbaten vom topologischen Isolator zu entfernen sein. Hierzu wurde in einem ersten Schritt eine Schicht Se auf den topologischen Isolator aufgebracht. Für die Materialien $\text{Se}/\text{BiSbTe}_3/\text{Si}(111)$ (BST 651, 370 nm / 26,8 nm / Substrat) und $\text{Se}/\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{InP}(111)$ (BST 1111, 75 nm / 30 nm / Substrat) konnte die Se-Schicht jedoch nicht durch Heizen von der Oberfläche entfernt werden. Ein zusätzlicher Versuch, die Se-Schicht der BST651 Probe durch Aceton zu entfernen, misslang ebenfalls. In allen Fällen war in XPS-Spektren der Verbleib der Se-Schicht auf der Oberfläche erkennbar und es konnten keine 2PPE Spektren gemessen werden.

Als Konsequenz der erfolglosen Versuche wurde die Se-Schicht in einem weiteren Schritt durch Ti ersetzt. An der Probe $\text{Ti}/(\text{Bi}_{0,07}\text{Sb}_{0,93})_2\text{Te}_3/\text{Si}(111)$ (BST 970, 9 nm/98 nm/Substrat) wurde die Ti-Schicht innerhalb von 12 Stunden in 30% H_2O_2 vollständig entfernt. In LEED Untersuchungen zeigte sich jedoch keine Struktur im

Beugungsbild, die Oberfläche besaß daher keine langreichweitige kristalline Ordnung mehr. Anschließende Photoemissionsuntersuchungen konnten ebenfalls keine Bandstruktur der Oberfläche aufzeigen. Es ist zu vermuten, dass die aggressive Entfernung der Ti-Schicht nicht selektiv genug stattfindet und die Oberfläche des topologischen Isolators dadurch nicht atomar glatt oder mit einer Vielzahl von Defekten versehen ist.

Zusammenfassend zeigt sich, dass die Präparation von Dünnschichtproben topologischer Isolatoren eine nicht zu unterschätzende Herausforderung darstellt. Im Hinblick auf Vorteile der Dünnschichtproben gegenüber den Volumenkristallen, insbesondere in der hohen Kontrolle über die Stöchiometrie und die Dotierung, erscheint es jedoch sinnvoll, die hier begonnenen Untersuchungen fortzusetzen.

Die in dieser Arbeit diskutierten Ergebnisse wurden vollständig an präparierten Volumenkristallproben gemessen. Die verwendeten Sb_2Te_3 , $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$, $(\text{Sb}_{1-x}\text{Bi}_x)_2\text{Te}_3$ und Bi_2Te_3 Einkristalle wurden in einem modifizierten Bridgman Verfahren [182] hergestellt. Hierbei werden die stöchiometrisch abgemessenen Reinstoffe in evakuierten Quarzampullen aufgeschmolzen und kristallisiert. Die entstehenden Einkristalle erreichen bis zu mehreren Zentimetern Länge und Durchmesser. Entlang der Kristallisationsrichtung weisen die entstandenen Kristalle typischerweise eine nicht konstante Stöchiometrie auf. Die daraus resultierende unterschiedliche Dotierung des Kristalls bewirkt eine unterschiedliche Lage der Fermienergie E_F in Bezug auf den topologischen Oberflächenzustand. Für Bi_2Te_3 und $(\text{Sb}_{1-x}\text{Bi}_x)_2\text{Te}_3$ kann sich die Dotierung in einem Kristall von n-artig (Dirac-Punkt unterhalb E_F) zu p-artig (Dirac-Punkt oberhalb E_F) ändern [182]. Man spricht in diesem Fall von einem natürlichen p-n-Übergang (engl.: *natural p-n-junction*).

Für die Photoemissionsuntersuchungen werden aus den Einkristallen Teilstücke mit Abmessungen von bis zu $5\text{ mm} \times 5\text{ mm}$ und einer Dicke von 1 mm entlang der c-Achse des Kristalls herausgeschnitten und mit einem leitfähigen 2-Komponenten-Epoxidharzklebstoff (EPO-TEK E4110) auf Mo- oder Cu-Probenhalter aufgeklebt.

Die Oberflächenpräparation der untersuchten topologischen Isolatoren unterscheidet sich aufgrund der Quintupellagen-Struktur deutlich von der Präparation typischer Volumenkristalle von Metallen (z. B. Ag durch Sputter- und Heizzyklen [183]) oder Halbleitern (z. B. Silizium durch Widerstandsheizen [173]). Die schwache van-der-Waals-Wechselwirkung zwischen den einzelnen Quintupellagen ermöglicht ein einfaches Spalten des Kristalls senkrecht zur c-Achse durch Abziehen eines zuvor aufgeklebten Klebestreifens. Man spricht hierbei von der *Scotch Tape* Methode. Die auf diese Weise abgetragenen Schichten sind mehrere $10\text{--}100\text{ }\mu\text{m}$ dick. Zur Vermeidung des erneuten Verschmutzens der gespaltenen Oberfläche muss das Abziehen des Klebestreifens im Vakuum erfolgen.

An der ZAPES I beginnt die Präparation der Oberfläche mit dem Aufbringen eines Klebestreifens (Tesa Kristallklar) auf den topologischen Isolator an Luft. Die

Probe wird anschließend in das Transfersystem eingesetzt und auf $5 \cdot 10^{-8}$ mbar abgepumpt. Zur Verbesserung des Drucks im Transfersystem und Verringerung des Wasseranteils im Restgas wird dieses für mehrere Stunden, typischerweise über Nacht, auf 80-100°C geheizt. Im abgekühlten Transfersystem beträgt der Druck anschließend nur noch $5 \cdot 10^{-9}$ mbar. Nach dem Öffnen des Plattenventils zwischen Transfersystem und Hauptkammer wird die Probe mit einem Linearvershub in den Kryostaten eingesetzt. Beim Zurückziehen des Vershubs wird der Klebestreifen von der Probe abgezogen, ein Teil des Materials verbleibt am Klebestreifen und es entsteht eine frisch gespaltene, saubere und präparierte Oberfläche. Während des Spaltens beträgt der Kammerdruck $1 \cdot 10^{-10}$ mbar, nach dem Entfernen des Linearvershubs und dem Schließen des Plattenventils fällt der Druck innerhalb einer Minute wieder auf den Basisdruck von $5 \cdot 10^{-11}$ mbar. Die Absorption von Restgasen während des Spaltens ist daher vernachlässigbar gering. Wird auf ein Ausheizen der Transferkammer verzichtet, beträgt der Druck während des Spaltens bis zu $5 \cdot 10^{-10}$ mbar und die Zeit zum Erreichen des Basisdrucks verlängert sich auf mehrere Minuten.

Das Spalten der Proben mit einem Klebestreifen im UHV erreicht bei nicht gekühlten Proben eine nahezu hundertprozentige Erfolgsquote. Für noch nicht wiederholt gespaltene Kristalle ist die erzeugte Oberfläche meist über den gesamten Kristall makroskopisch glatt und zeigt auch eine homogene Photoemissionsstruktur. Die nur in wenigen Fällen beobachteten Schwankungen der Fermienergie zwischen verschiedenen Präparationen waren kleiner ± 50 meV. Nach wiederholten Spaltzyklen oder beim Spalten gekühlter Proben verbleibt die Oberfläche unter Umständen teilweise aufgeraut oder sogar partiell ungespalten zurück. In den meisten Fällen konnten aber auch hier geeignete Stellen für Photoemissionsuntersuchungen gefunden werden.

Kapitel 4

Ladungsträgerdynamik in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$

Der Oberflächenzustand eines topologischen Isolators unterscheidet sich durch seine lineare Dispersion und die verbotene direkte Rückstreuung von Elektronen aufgrund des spin-momentum lockings deutlich von elektronischen Zuständen in topologisch trivialen Materialien. Während die Elektronendynamik in Oberflächenzuständen an Halbleitern [184] sowie Metallen [73] und insbesondere im Modellsystem der Bildpotentialzustände [106] bereits eingehend untersucht wurde, ist die Anzahl der Untersuchungen zur Elektronendynamik in topologische Isolatoren vergleichsweise klein.

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Untersuchung der Elektronendynamik in den unbesetzten Zuständen von Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ präsentiert. Das Kapitel ist dabei in zwei Abschnitte unterteilt, in denen separat die Dynamik nach Anregung mit sichtbaren (VIS) und Mittelinfrarot-Laserimpulsen (MIR) diskutiert wird.

Der erste Abschnitt beinhaltet einen Vergleich der Struktur der unbesetzten Zustände und der Elektronendynamik in den Materialien Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ nach Anregung mit Laserimpulsen im sichtbaren Spektralbereich ($\lambda = 475 \text{ nm}$, $\hbar\omega = 2.6 \text{ eV}$, Pulsdauer 70 fs). Der Schwerpunkt der Auswertung liegt hierbei auf der Beschreibung der grundsätzlichen Anregungs- und Zerfallsmechanismen bei optischen Anregungen mit Photonenenergien oberhalb der Bandlücke der Materialien. Die Untersuchung der Dynamik bei unterschiedlichen Temperaturen und der Vergleich der beiden Materialien erlaubt es den Einfluss verschiedener Zerfallskanäle voneinander zu trennen. Die Ergebnisse dieses Abschnitts sind in [12] veröffentlicht.

Das daran anschließende Unterkapitel widmet sich einem Vergleich der Elektronendynamik in Sb_2Te_3 bei Verwendung verschiedener Photonenenergien der Pump-laserimpulse. Dabei werden zusätzlich zu der in Abschnitt 4.1 diskutierten sichtbaren Wellenlänge auch NIR- ($\lambda = 1.35 \text{ }\mu\text{m}$, $\hbar\omega = 0.9 \text{ eV}$, Pulsdauer 100 fs) und MIR-Pumplaserimpulse ($\lambda = 3.3 \dots 5.0 \text{ }\mu\text{m}$, $\hbar\omega = 0.37 \dots 0.25 \text{ eV}$, Pulsdauer 100 fs) verwendet. Die Diskussion wird aufzeigen, dass sich durch die Reduzierung der Photonenenergie der Pumplaserimpulse in den Bereich der Bandlücke von Sb_2Te_3 die Anregungscharakteristik der Elektronen signifikant von einer indirekten Befüllung hin zu einer direkten optischen Anregung des topologisch geschützten Oberflächenzustands

ändert. Diese mit Kenta Kuroda gemeinsam durchgeführten Experimente [21–23] bilden somit auch die Grundlage der in Kapitel 5 diskutierten asymmetrischen Besetzung des Dirac-Kegels.

4.1 Anregung mit sichtbaren Impulsen

4.1.1 Identifikation unbesetzter Zustände in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$

In Abbildung 4.1 sind 2PPE Übersichtsspektren für Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ bei zeitlichem Überlapp von Anrege- ($\hbar\omega_{\text{vis}} = 2.58 \text{ eV}$) und Abfrageimpuls ($\hbar\omega_{\text{UV}} = 5.16 \text{ eV}$) dargestellt. Beide Materialien zeigen über den gesamten angeregten und beobachteten Energiebereich eine sehr ähnliche Photoemissionsstruktur.

Für niedrige Energien ($E - E_{\text{F}} \lesssim 100 \text{ meV}$) kann der Bereich hoher Intensität einer transienten Besetzung des Valenzbands (VB) und des mit ihm überlappenden unteren Teils des Dirac-Kegels zugeordnet werden. Die Lage der Fermienergie E_{F} im Valenzband weist beide Materialien als p-dotiert aus.

Sowohl Sb_2Te_3 als auch $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ zeigen oberhalb der Valenzbandkante einen linear dispergierenden Zustand, der klar als der topologisch geschützte Oberflächenzustand (engl.: *topological surface state*, *TSS*) identifiziert werden kann. Der Dirac-Punkt E_{D} liegt bei $E_{\text{D}} - E_{\text{F}} = 135(20) \text{ meV}$ für Sb_2Te_3 und $120(20) \text{ meV}$ für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$. Die Ungenauigkeit der Energieposition bei beiden Materialien folgt aus der von der Präparation abhängigen Lage der Fermienergie. Die Energie des Dirac-Punktes E_{D} kann dabei um bis zu $\pm 50 \text{ meV}$ schwanken. Unabhängig von der Präparation ist der Dirac-Punkt für beide Materialien im Gleichgewicht immer unbesetzt.

Für Sb_2Te_3 kann die lineare Dispersion des Oberflächenzustands bis zu 350 meV über E_{D} beobachtet werden, in den Spektren für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ sogar bis zu 500 meV oberhalb des Dirac-Punktes. Die zwischen positiven und negativen Parallelimpulsen k_{\parallel} stark asymmetrische Photoemission ist nicht auf eine Asymmetrie der elektronischen Struktur zurückzuführen. Die in Abbildung 4.1, 4.2 und 4.3 gezeigten Photoemissionsdaten wurden in einer experimentellen Geometrie gemessen, in der der Eingangspalt des Detektors in der Einfallsebene des Lasers lag. Dadurch sind Matrixelemente für die Photoemission asymmetrisch und die Photoemission ist nicht mehr symmetrisch um $k_{\parallel} = 0 \text{ \AA}^{-1}$. Für die in den späteren Kapiteln präsentierten Daten ist deshalb der Detektor gedreht worden. Die Photoemission aus dem Dirac-Kegel ist dadurch wieder vollständig symmetrisch (vgl. Abbildung 4.7 (e)).

Die elektronische Struktur beider Materialien zeigt oberhalb des Dirac-Kegels erste Unterschiede. Das Photoemissionsspektrum von $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ ist im Vergleich zu Sb_2Te_3 zu höheren Energien verschoben. Dieses experimentelle Resultat bestätigt damit eine Vorhersage theoretischer Bandstrukturechnungen [65] (siehe Abbildung 2.6).

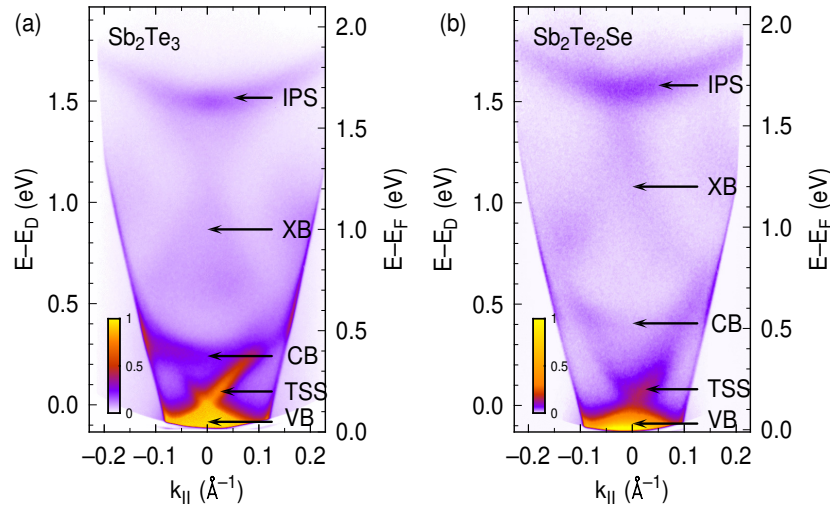


Abb. 4.1: (a), (b) Energie- und winkelaufgelöstes 2PPE Spektrum für Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ für zeitlich überlappende Anrege- und Abfrageimpulse. Gekennzeichnet sind jeweils Valenzband (VB), der topologische Oberflächenzustand (TSS), das Leitungsband (CB), energetisch höher liegende Volumen- und Oberflächenbänder (XB) und der erste Bildpotentialzustand (engl.: *image potential state*, *IPS*).

Die Stärke der Verschiebung ist je nach betrachtetem elektronischem Zustand unterschiedlich stark. Das parabolisch dispergierende Band direkt oberhalb des TSS kann als Leitungsband (engl.: *conduction band*, *CB*) identifiziert werden. Für Sb_2Te_3 liegt das Minimum des CB (engl.: *conduction band minimum*, *CBM*) dabei rund 150 meV über E_D . Im Falle von $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ ist die genaue Lage des CBM aufgrund der unscharfen Photoemission nicht gleichermaßen genau zu bestimmen, ist aber im Vergleich zu Sb_2Te_3 um mindestens 100 meV zu höheren Energien verschoben. Die Bestimmung der genauen Lage des CBM ist im Rahmen der hier präsentierten Experimente nicht eindeutig möglich, da die eingeschränkte Wahl der Photonenenergie des Abfragelaserimpulses nur die Photoemission in einem kleinen Bereich des k_z -Impulses zulässt. Je nach Photonenenergie ist damit in den Photoemissionsspektren nicht das echte Leitungsbandminimum zu erkennen. Zusätzlich zeigt auch die Photoemissionsintensität der Volumenbänder durch die vorhandene k_z -Dispersion (siehe Abbildung 2.8) eine zum Teil starke Wellenlängenabhängigkeit [40, 78].

Die Energieverschiebung ist außer im CB auch in den schwachen, leicht X-förmigen Zuständen (XB) zu erkennen. Dieser Teil des Spektrums wird der Photoemission aus Volumen- und Oberflächenbändern bei höheren Energien zugeordnet. Er ist bei $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ im Vergleich zu Sb_2Te_3 um ≈ 250 meV zu höheren Energien verschoben.

Der parabolisch dispergierende Zustand bei $E - E_F \approx 1.75$ eV ist der erste ($n=1$) Bildpotentialzustand (engl.: *image potential state*, *IPS*). Im Vergleich zu den bisher diskutierten Zuständen ist für den Bildpotentialzustand die Rolle der sichtbaren und der UV-Laserimpulse vertauscht, der IPS wird mit dem UV-Impuls besetzt und an-

schließend mit dem sichtbaren Impuls photoemittiert. Der Bildpotentialzustand für Sb_2Te_3 erscheint dadurch trotz seiner Energie $E - E_{\text{vac}} = 0.85(0.10)$ eV respektive $E - E_{\text{F}} = 4.25(0.10)$ eV bei vergleichsweise niedrigen kinetischen Energien. Die Bindungsenergie des $n=1$ liegt für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ bei $E - E_{\text{vac}} = 0.80(0.10)$ eV.

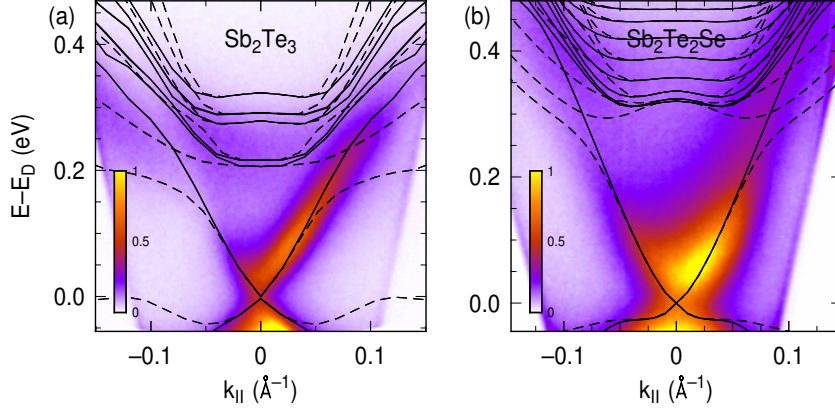


Abb. 4.2: Winkelaufgelöstes 2PPE Spektrum von (a) Sb_2Te_3 entlang $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ und (b) von $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ entlang einer Kristallrichtung zwischen $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ und $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{M}}$. Die Daten sind mit einer Anrege-Abfrage-Verzögerung von 670 fs für Sb_2Te_3 bzw. 870 fs für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ gezeigt. Die berechneten Bandstrukturen aus [65] sind als durchgezogene Linie entlang $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ und als gestrichelte Linie entlang $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{M}}$ über die Daten gelegt.

Hochauflöste Aufnahmen des Dirac-Kegels von Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ in Abbildung 4.2 erlauben einen Vergleich der Dispersion untereinander und mit der berechneten Bandstruktur aus [65]. Der direkte Vergleich der Photoemissionsdaten in Abbildung 4.2 (a) und (b) zeigt, dass die Photoemission aus dem Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 in Energierichtung deutlich schmäler ist. Die Photoemission aus $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ ist unabhängig von Präparation und Alter der Probe immer vergleichbar mit dem Spektrum in (b). Die Spektren von Sb_2Te_3 hingegen zeigen, wenn auch nur selten, verbreiterte Photoemission nach einer schlechten Probenpräparation oder nach mehrmaligen Zyklen des Abkühlens auf Flüssigstickstofftemperatur und anschließendem Auftauen auf Raumtemperatur. Somit scheint ein möglicher Grund für die generell verbreiterte Photoemission aus $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ eine höhere Anzahl von Defekten zu sein, die unter Umständen schon während der Herstellung des Kristalls entstanden sind. Unabhängig von der Breite der Spektren zeigt die gemessene Bandstruktur beider Materialien eine ausgezeichnete Übereinstimmung mit der Theorie. Bei Sb_2Te_3 stimmen sowohl die Dispersion des Oberflächenzustands (schwarze Linie) als auch die Lage des Leitungsbands entlang der dargestellten Richtung $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ sehr gut mit der Theorie überein. Für andere Kristallrichtungen deutet sich die theoretisch vorhergesagte Anisotropie zwischen $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ und $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{M}}$ (engl.: *warping*) an.

Auch für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ stimmt die gemessene Dispersion sehr gut mit der Theorie überein. Das von der Rechnung vorausgesagte, deutlich kleinere Warping in $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ ist verträglich zu den in (b) präsentierten Daten einer Richtung zwischen $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} und $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} . Details wie das verstärkte Abflachen des unteren Teils des Dirac-Kegels aus der Theorie werden von den experimentellen Daten ebenfalls reproduziert.

Ein deutlicher Unterschied zwischen Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ ist im genauen Verlauf der Dispersion nahe des Dirac-Punktes zu erkennen. Während die Dispersion in Sb_2Te_3 über den gesamten sichtbaren Bereich linear verläuft, zeigt sich bei $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ eine endliche Krümmung im Bereich um den Dirac-Punkt. Solch eine Abweichung von einer linearen Dispersion ist aus Photoemissionsdaten anderer multiteritärer Materialien bekannt [82, 84], die genaue Ursache ist dabei noch nicht vollständig geklärt.

Die durchgehend lineare Dispersion in Sb_2Te_3 erlaubt die Extraktion der Fermigeschwindigkeit $v_F = 3.4(0.2) \text{ \AA/fs}$ des oberen Teils des Dirac-Kegels. Für dünne Filme von Sb_2Te_3 wurde v_F in der Literatur durch Landau-Level-Spektroskopie zu $v_F = 4.3 \text{ \AA/fs}$ [185] und aus de Haas van Alphen-Oszillationen zu $v_F = 5.3 \text{ \AA/fs}$ [186] bestimmt. Die beiden Literaturwerte sind dabei fast 40% größer als der hier aus Photoemission bestimmte Wert. Die signifikante Abweichung ist dabei wahrscheinlich in der Verwendung von Dünnschichtproben in [185, 186] begründet. Für die Dispersion des unteren Dirac-Kegels wurde solch eine signifikante Erhöhung der v_F beim Übergang vom Volumenkristall zu einzelnen Quintupellagen ebenfalls gezeigt [47, 83].

Vergleicht man die hier gemessene v_F des oberen Teils des Dirac-Kegels mit Werten für v_F im unteren Dirac-Kegel in Volumenkristallen, so zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung sowohl zu Photoemissionsergebnissen mit $v_F = 3.8(0.2) \text{ \AA/fs}$ als auch zu Vorhersagen aus Bandstrukturechnungen mit $v_F = 3.2 \text{ \AA/fs}$ [11].

4.1.2 Elektronendynamik in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ nach Anregung mit sichtbaren Laserimpulsen

In Abbildung 4.3 (a) ist die Elektronendynamik in Sb_2Te_3 nach Anregung mit Laserimpulsen der Photonenenergie $\hbar\omega = 2.56 \text{ eV}$ in Einzelbildern gezeigt. Bei einer Zeitverzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls von $\Delta t = -1 \text{ ps}$ ist trotz einer um Faktor fünf überhöhten Intensität keine Struktur im Spektrum zu erkennen. Dies zeigt eindeutig, dass der im weiteren untersuchte Dirac-Kegel ohne Anregung unbesetzt ist.

Bereits für $\Delta t = 0 \text{ ps}$ ist eine deutliche Besetzung des Oberflächenzustands zu erkennen, die maximale Anregung wird jedoch erst bei $\Delta t \approx 1 \text{ ps}$ erreicht. Der Zerfall der Besetzung findet anschließend auf einer Pikosekunden-Zeitskala statt. Auffällig ist dabei, dass der Zerfall in zwei Energiebereiche unterschiedlicher Dynamik aufgeteilt ist. Im Bild für $\Delta t = 2 \text{ ps}$ ist eine deutliche Abgrenzung der Besetzung bei $E - E_D \approx 150 \text{ meV}$ zu erkennen. Die angeregten Elektronen oberhalb dieser Energie sind bei einer Verzögerung $\Delta t = 2 \text{ ps}$ bereits vollständig zerfallen. Die Besetzung unterhalb dieser Grenze ändert hingegen ihre Form selbst bei größeren Verzögerungen Δt kaum,

die Elektronen zerfallen in diesem Bereich also mit einer gemeinsamen Zerfallszeit. Elektronen oberhalb von $E - E_D \approx 150 \text{ meV}$ haben im Vergleich dazu eine deutlich kürzere Lebensdauer.

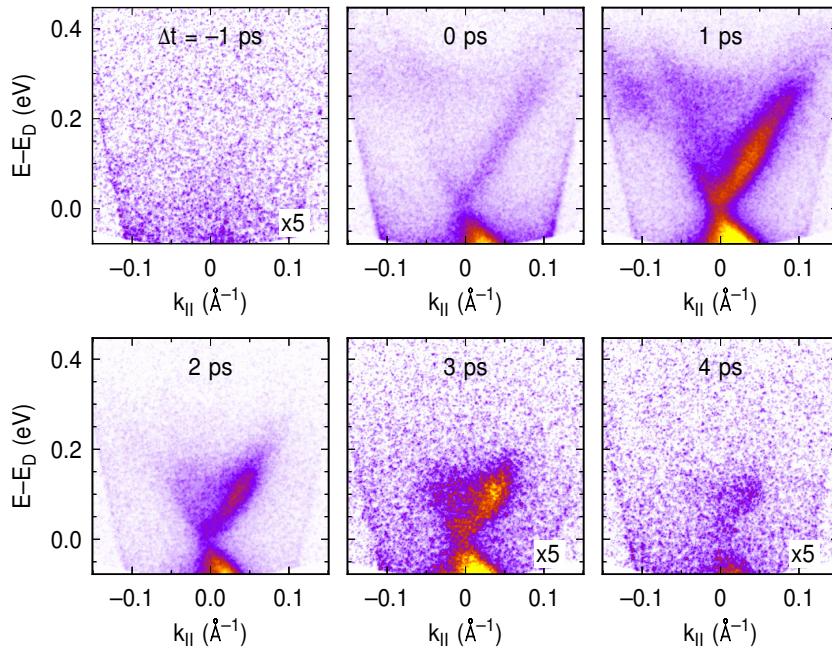


Abb. 4.3: 2PPE Spektren zu unterschiedlichen Verzögerungen Δt zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Die Intensität bei $\Delta t = -1 \text{ ps}$, 3 ps und 4 ps ist zur Verdeutlichung um den Faktor fünf skaliert.

Für eine detaillierte Analyse der Zerfalldynamik wurde die Besetzung des Dirac-Kegels in einzelne Bereiche unterteilt. Die Intensität der in Abbildung 4.4 (a) eingezeichneten Regionen wurde dazu integriert und kann dann als Funktion der Verzögerung Δt in (b), (c) und 4.5 aufgetragen werden.

In Abbildung 4.4 (b) und (c) ist für Sb_2Te_3 bzw. $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ die Dynamik der Besetzung im Dirac-Kegel (blau, 1-10), im Leitungsband (rot, CB) und in einer Region in den höher liegenden Volumen- und Oberflächenbändern ($E - E_D = 650 \text{ meV}$, gelb, XB) abgebildet. Die Kurven sind dabei einzeln auf ihr jeweiliges Maximum normiert.

Für Sb_2Te_3 zeigen die Kurven eins bis fünf bei niedrigen Energien eine nahezu identische Dynamik, für höhere Energien zerfällt die Besetzung schneller. Die Region CB hat im Leitungsband annähernd die gleiche Dynamik wie die Region im Dirac-Kegel bei gleicher Energie. Die Region XB in den höher liegenden Zuständen zerfällt auf einer deutlichen kürzeren Zeitskala als die Zustände näher am Ferminiveau. Der beschleunigte Zerfall folgt dabei im einfachsten Fall aus dem der Streuung zur Verfügung stehenden, vergrößerten Phasenraum. Eine nähere Betrachtung der Transienten entlang des Dirac-Kegels zeigt, dass neben der Zerfalldynamik auch die Dynamik

der Anregung in den Dirac-Kegel eine deutliche Energieabhängigkeit besitzt. Allen Bereichen des Dirac-Kegels gemein ist das Erreichen der maximalen Intensitäten bei Verzögerungen im Bereich von 0,5-1,0 ps bei Sb_2Te_3 bzw. 0,75-1,5 ps bei $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$. Unabhängig vom Material wird bei Regionen niedrigerer Energien das Maximum später erreicht. Die maximale Besetzung tritt also erst deutlich nach Ablauf des Anregimpulses ein. Dies zeigt unmittelbar, dass die Besetzung des Dirac-Kegels nach Anregung mit Photonenenergien $\hbar\omega_{\text{vis}}=2.58\text{ eV}$ zu einem Großteil durch eine indirekte Befüllung erfolgen muss. Dieser Mechanismus wurde auch in anderen topologischen Isolatoren bei Anregung mit Photonenenergien von 1.5 eV beobachtet [14, 19, 187] und ist in Abbildung 4.4 (d) skizziert. Im Vergleich zu diesen Ergebnissen ist in den hier präsentierten Transienten deutlich eine Besetzung des Dirac-Kegels auf zwei verschiedenen Zeitskalen zu erkennen. Sowohl für Sb_2Te_3 als auch $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ zeigen die Daten erst einen sehr schnellen Anstieg der Population, gefolgt von einem langsameren Anstieg bis zur maximalen Besetzung. Dieser erste schnelle Anstieg ist durch eine teilweise direkte optische Anregung des Dirac-Kegels erklärbar, die zwischen 30% und 50% der Gesamtbesetzung bewirkt. Im hier diskutierten Fall wird der topologische Oberflächenzustand also zu einem Teil direkt und zu einem anderen Teil durch Streuprozesse aus anderen Zuständen besetzt. Dieser teilweise direkte Anregungspfad wird bei Anregung mit 800 nm Impulsen nicht beobachtet [188].

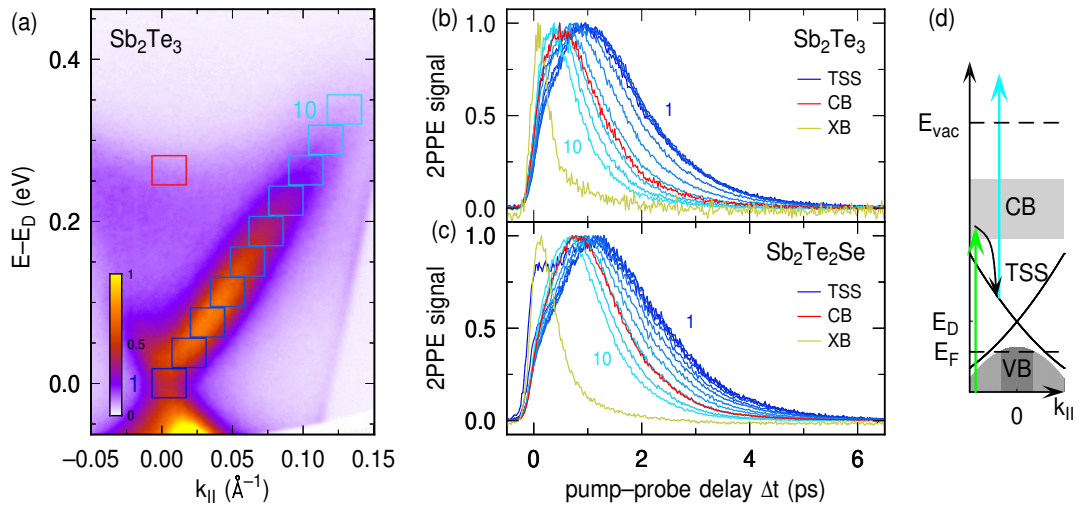


Abb. 4.4: (a) 2PPE Spektrum des Oberflächenzustands. Die Rechtecke markieren die in (b) und (c) ausgewerteten Integrationsbereiche. (b) 2PPE-Transienten der Regionen in (a) für Sb_2Te_3 . Die Kurven sind jeweils auf ihr Maximum normiert. Der Integrationsbereich XB liegt bei $E - E_D = 650\text{ meV}$ und $k_{\parallel} = 0\text{ Å}^{-1}$. (c) 2PPE-Transienten wie in (b) für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$. (d) Anregungsschema der Besetzung des Dirac-Kegels nach Anregung mit Vis-Impulsen und einem Transfer der Elektronen aus dem Leitungsband (CB) mit anschließender Photoemission aus dem topologischen Oberflächenzustand (TSS) mit UV-Impulsen.

Zur Modellierung der Elektronendynamik in elektronischen Zuständen werden häufig komplexe Ratengleichungsmodelle genutzt, welche die Änderung der Besetzung eines Zustands als Summe aller Streuungen aus dem Zustand heraus und von allen anderen Zuständen in den Zustand hinein beschreiben. Im hier vorliegenden Fall wird das Modell deutlich vereinfacht angewendet. Dazu wird die Betrachtung der Dynamik auf den Zeitbereich nach dem Erreichen des Maximums beschränkt. Sowohl die Beiträge der Anregung durch den Pumpimpuls als auch die Beiträge der Streuung aus höher liegenden Zuständen in den Dirac-Kegel können somit vernachlässigt werden. In der Annahme genau eines dominanten Zerfallsprozesses ergibt sich damit ein einfach exponentieller Zerfall der Besetzung $N(t) = N_0 \cdot \exp(t/\tau)$.

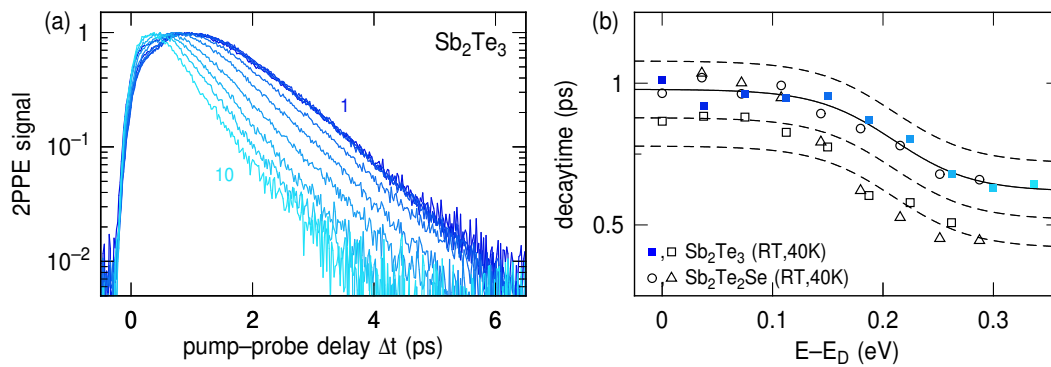


Abb. 4.5: (a) Logarithmische Darstellung der 2PPE Transienten der in Abbildung 4.4 (a) gezeigten Regionen für Sb_2Te_3 . (b) Zerfallszeiten entlang des topologischen Oberflächenzustands für Sb_2Te_3 bei Raumtemperatur (RT, blaue Vierecke) und tiefer Temperatur (40 K, offene Vierecke), sowie für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ bei Raumtemperatur (RT, offene Kreise) und tiefer Temperatur (40 K, offene Dreiecke). Die durchgezogene schwarze Linie folgt dem Verlauf der Zerfallszeiten, die gestrichelte Linie markiert die Streuung der Zerfallszeiten bei unterschiedlichen Präparationen.

Zur Überprüfung der Gültigkeit dieses vereinfachten Modells sind in Abbildung 4.5 (a) die Intensitäten entlang des Dirac-Kegels in logarithmischer Darstellung aufgetragen. Deutlich zu erkennen ist der lineare Verlauf der Intensität für hohe Verzögerungen Δt . Die Verwendung eines einfach exponentiellen Zerfalls ist damit gerechtfertigt und erlaubt die Extraktion einer effektiven Lebensdauer τ als Funktion der Energie bezüglich des Dirac-Punktes.

Abbildung 4.5 (b) zeigt die ermittelten Lebensdauern τ als Funktion der Energie $E - E_D$ auf. Die Lebensdauer bei Raumtemperatur ist für beide Materialien sehr ähnlich und bei niedrigen Energien innerhalb der Volumenbandlücke nahezu konstant bei $\tau_{\text{RT}} \approx 1,0$ ps, um dann ab $E - E_D \approx 150$ meV auf $\tau_{\text{RT}} \approx 0,65$ ps abzunehmen. Aktuelle Untersuchungen [188] an Sb_2Te_3 bestätigen diese Beobachtung. Der Unterschied der beiden Materialien ist dabei kleiner als die Variation der Lebensdauern desselben

Materials zwischen verschiedenen Präparationen mit leicht unterschiedlichem $E - E_F$ (gestrichelte Linien). Die Abhängigkeit von der Lage der Fermienergie zeigt, dass der Zerfall im Dirac-Kegel stark von der Zahl der unbesetzten Zustände im Valenzband dominiert ist. Das weist wiederum auf Elektron-Loch-Paar Erzeugung als dominanten Zerfallsmechanismus hin. Für andere p-dotierte topologische Isolatoren wurde dieser Zusammenhang ebenfalls gezeigt [19, 62, 72, 187].

Die Energieposition, bei der es in Sb_2Te_3 zu einer Veränderung der Lebensdauern kommt, stimmt nahezu mit der Energie des Leitungsbandminimums überein. Eine Beschleunigung des Zerfalls ist durch eine effektive Streuung aus dem Oberflächenzustand in die Volumenbänder aufgrund einer starken Kopplung zwischen den Bändern erklärbar. Auch bei $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ nimmt die Lebensdauer ab einer Energie $E - E_D \approx 150 \text{ meV}$ deutlich ab. Dies erscheint im Hinblick auf die um $\approx 100 \text{ meV}$ zu höheren Energien verschobenen Zuständen überraschend, möglicherweise ist in den gemessenen Spektren in Verbindung mit der Photonenenergie des Abfrageimpulses das wirkliche Leitungsbandminimum nicht erkennbar.

Ein Abkühlen der Proben auf ungefähr 40 K durch Kühlung mit flüssigem Helium bewirkt einen noch weiter beschleunigten Zerfall der Besetzung oberhalb von $E - E_D \approx 150 \text{ meV}$, während die Lebensdauer in der Bandlücke nahezu unverändert bleibt. Die Auswertung der Transienten von $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ ergibt dabei eine Verringerung der Lebensdauer auf bis zu $\tau_{40\text{K}} \approx 0,45 \text{ ps}$ im Vergleich zu $\tau_{\text{RT}} \approx 0,65 \text{ ps}$. Diese signifikante Beschleunigung der Dynamik spricht dafür, dass im Bereich der Überlappung von Oberflächen- und Volumenbändern der Transport der Elektronen von der Oberfläche weg in das Volumen hinein wie auch in Metallen und Halbleitern [122, 189, 190] einen wichtigen Zerfallskanal darstellt. Der Transport entlang des Ladungsträgergradienten ist dabei aufgrund der erhöhten Leitfähigkeit bei niedrigen Temperaturen effektiver und führt zu der deutlichen Verringerung der Lebensdauer.

Die Lebensdauern im Dirac-Kegel in der Bandlücke unterhalb von $E - E_D \approx 150 \text{ meV}$ zeigen hingegen keinen Unterschied zwischen Raum- und Tieftemperaturmessungen. Da eine Probentemperatur von 40 K deutlich unterhalb der Debye Temperatur von 160 K für Sb_2Te_3 [191, 192] bzw. 185 K für $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ [193] liegt, können Phononen für die Elektronendynamik im Dirac-Kegel beider Materialien, im Vergleich zur Situation in Bi_2Te_3 [17], nur eine untergeordnete Rolle spielen.

4.2 Anregung mit durchstimmbaren Impulsen

Die Diskussion der Elektronendynamik in Sb_2Te_3 nach Anregung mit sichtbaren Anregungsimpulsen in Abschnitt 4.1 zeigt, dass trotz einer teilweisen direkten Anregung des Dirac-Kegels die indirekte Befüllung aus energetisch höher liegenden Zuständen der dominante Prozess der Besetzung ist. Um eine zur Erzeugung von Photoströmen notwendige Kontrolle über die Besetzung zu erhalten, ist es daher nötig, diesen indirekten

Prozess zu verhindern oder zumindest die direkte optische Anregung zum dominanten Beitrag der Besetzung zu verändern. Dieses Unterkapitel präsentiert die unter diesem Gesichtspunkt durchgeführten Experimente mit Anregungen unterschiedlicher Photonenenergien und diskutiert die gefundene direkte optische Anregung innerhalb des Dirac-Kegels bei Nutzung von MIR-Impulsen.

4.2.1 Anregungsdynamik im Dirac-Kegel

Die experimentell zugänglichen Möglichkeiten, die indirekte Besetzung des Dirac-Kegels durch die Streuung von Elektronen aus anderen Zuständen zu unterdrücken, sind limitiert. Wie in Abschnitt 4.1 gezeigt, ist der Einfluss der Temperatur auf die grundlegende Dynamik im Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 vernachlässigbar. Untersuchungen an anderen topologischen Isolatoren [14, 19, 187] zeigen, dass unabhängig von den Details der konkreten Bandstruktur die indirekte Befüllung den wichtigsten Beitrag zur Besetzung im Oberflächenzustand nach Anregung mit sichtbaren oder 800 nm Impulsen bleibt. Um trotzdem den Einfluss des indirekten Transfers in den Oberflächenzustand zu minimieren, muss daher das Verhältnis von direkter zu indirekter Besetzung auf eine andere Weise erhöht werden.

Eine Möglichkeit hierfür ist es die Photonenenergie des Anregeimpulses zu variieren. Die Idee ist dabei, durch geschickte Wahl der Wellenlänge die Anregung in Zustände oberhalb des Dirac-Kegels deutlich zu reduzieren, um damit den indirekten Transfer zu unterdrücken und zusätzlich dazu eine signifikante direkte optische Anregung zu erzeugen. Das an der ZAPES I installierte Lasersystem besitzt dafür durch seinen sehr großen Durchstimmbereich von 0,15 eV bis 2,6 eV ideale Voraussetzungen.

Die Ergebnisse der Anregung mit verschiedenen Photonenenergien des Anregeimpulses sind in Abbildung 4.6 exemplarisch für drei Wellenlängen dargestellt. Hierzu ist für jede Photonenenergie eine Region im Dirac-Kegel bei $E - E_D = 160$ meV auf Höhe des Leitungsbands integriert und als Funktion der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls aufgetragen. In der Übersichtsabbildung (a) ist die Aufteilung der Dynamik in zwei Gruppen zu erkennen. Die Besetzung nach Anregung mit NIR- (0,91 eV, grüne Punkte) und VIS-Impulsen (2,55 eV, blaue Punkte) steigt über einen Zeitraum von einer Pikosekunde bis zu ihrer maximalen Intensität an, um dann nahezu wellenlängenunabhängig über mehrere Pikosekunden zu zerfallen. Somit zeigt sich für die Anregung mit $\hbar\omega = 0,91$ eV die bereits für die sichtbaren Photonenenergien in Abschnitt 4.1 diskutierte indirekte Anregung des Dirac-Kegels durch Streuprozesse aus energetisch höherliegenden Zuständen.

Die bei Anregung mit $\hbar\omega = 0,91$ eV im Vergleich zur Anregung mit sichtbaren Impulsen geringere maximale Energie der angeregten Zustände zeigt einen geringen Einfluss auf die Dynamik, da die Lebensdauer in diesen Zuständen im Vergleich zur Lebensdauer des Dirac-Kegels nur sehr kurz ist. Die maximale Besetzung wird für $\hbar\omega = 0,91$ eV nur leicht früher erreicht als für $\hbar\omega = 2,55$ eV. Die Anregung mit

MIR-Impulsen (0,37 eV, rote Punkte) zeigt im Gegensatz zu den anderen beiden Photonenenergien einen schnellen Anstieg bei null Verzögerung und ein Erreichen der maximalen Besetzung schon bei 0,1 ps. Anschließend zerfällt die Besetzung analog zu den anderen Wellenlängen exponentiell über mehrere Pikosekunden. Die Anregungsdynamik unterscheidet sich damit fundamental von der bisher diskutierten indirekten Besetzung des Dirac-Kegels durch Streuung aus energetisch höher liegenden Zuständen.

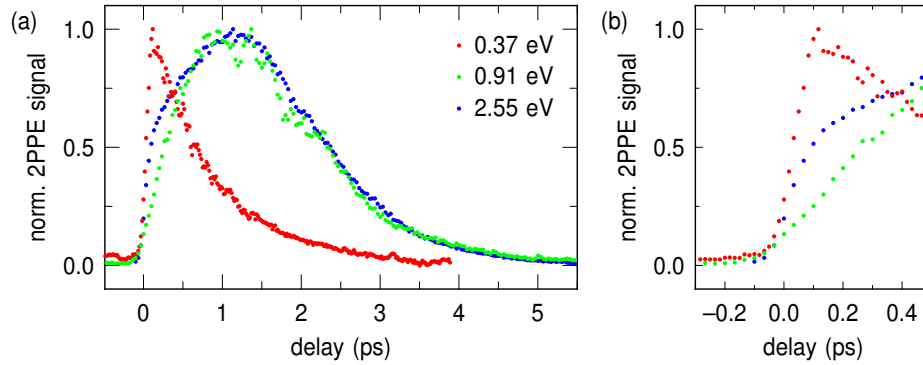


Abb. 4.6: Ladungsträgerdynamik des Dirac-Kegels in Sb_2Te_3 bei $E - E_D = 160 \text{ meV}$ für verschiedene Photonenenergien des Anregeimpulses und einer Proben temperatur von 80 K. (a) Die maximale Besetzung tritt bei Anregung mit VIS- (blaue Punkte, 2,55 eV) und NIR-Impulsen (grüne Punkte, 0,91 eV) wegen des Transfers der Ladungsträger deutlich verzögert ein. Für eine Anregung mit MIR-Impulsen (rote Punkte, 0,37 eV) ist die maximale Besetzung aufgrund einer direkten optischen Anregung unverzögert. (b) Der Ausschnitt der Daten aus (a) zeigt die deutlich schnellere Besetzung im Falle von der Anregung mit 0,37 eV und die zweigeteilte Dynamik bei 2,55 eV.

Der Ausschnitt in Abbildung 4.6 (b) zeigt die unterschiedliche Dynamik der Besetzung des Dirac-Kegels auf Höhe des Leitungsbands. Die Intensität nach Anregung mit $\hbar\omega = 0,37 \text{ eV}$ erreicht bereits nach 0,1 ps ihr Maximum. Dabei ist die scheinbare Verzögerung eine Konsequenz der endlichen Pulsbreiten der Laserimpulse in Verbindung mit der Lebensdauer des Zustands und kein Indiz für eine Befüllung aus anderen Zuständen. Die Anregung des Dirac-Kegels erfolgt somit für $\hbar\omega = 0,37 \text{ eV}$ ausschließlich direkt.

Die Besetzung nach Anregung mit sichtbaren Laserimpulsen zeigt die bereits diskutierte deutliche Zweiteilung der Dynamik, mit einer teilweisen direkten und anschließend dominierenden indirekten Besetzung. Für die Anregung mit $\hbar\omega = 0,91 \text{ eV}$ entfällt der teilweise direkte Anregungspfad und die Besetzung des Dirac-Kegels erfolgt ähnlich wie bei Anregung mit $\hbar\omega = 1,48 \text{ eV}$ [62] ausschließlich indirekt durch Streuung aus anderen Zuständen in den Oberflächenzustand.

Die Anregung des topologischen Oberflächenzustands in Sb_2Te_3 im Bereich des Leitungsbandminimums zeigt somit eine starke Abhängigkeit von der Photonenenergie.

gie des Anregelaserimpulses. Die Besetzung ist dabei für eine Vielzahl von Energien durch eine auf Streuprozessen beruhende indirekte Bevölkung des Dirac-Kegels dominiert. Durch die Wahl einer Energie von $\hbar\omega = 0,37 \text{ eV}$ im Bereich der Volumenbandlücke kann die indirekte Besetzung verhindert werden und die Besetzung erfolgt ausschließlich direkt.

4.2.2 Direkte optische Anregung in Dirac-Kegel

Die Betrachtung der Dynamik des Dirac-Kegels in der Nähe des Leitungsbands nach Anregung mit MIR-Impulsen in Abschnitt 4.2.1 zeigt eine nahezu instantane optische Anregung. Im Hinblick auf die für Photoströme notwendige Erzeugung asymmetrischer Besetzungen im Dirac-Kegel ist die genaue Kenntnis der Anfangs- und Endzustände der optischen Anregung notwendig. Die im letzten Abschnitt präsentierten Ergebnisse können für keinen der beteiligten elektronischen Zustände eine Aussage darüber geben, ob es sich um Volumen- oder um spinpolarisierte Oberflächenzustände handelt.

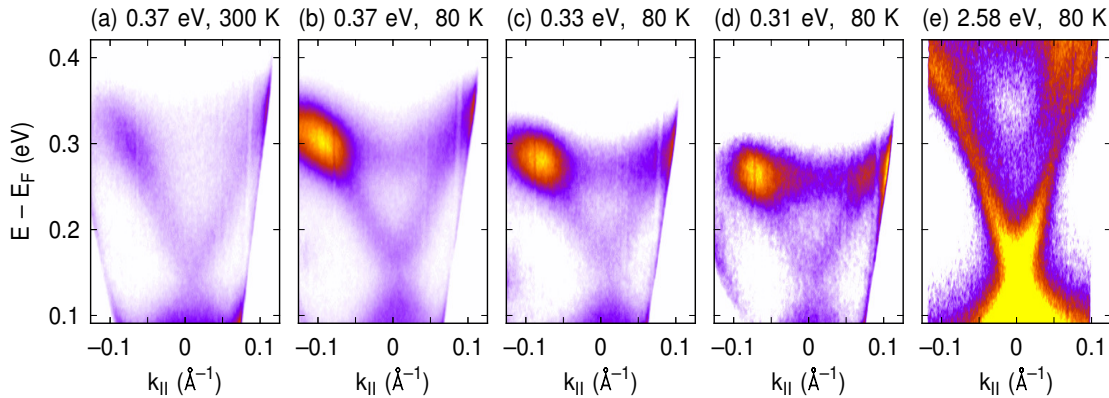


Abb. 4.7: (a),(b) Photoemissionsspektrum von Sb_2Te_3 nach Anregung mit $\hbar\omega = 0.37 \text{ eV}$ und Emission mit $\hbar\omega = 5.16 \text{ eV}$ bei einer Verzögerung von 50 fs. Die Populationsüberhöhung ist bei 80 K (b) stärker ausgeprägt als bei 300 K (a). (c),(d) Photoemissionsspektrum nach Anregung mit $\hbar\omega = 0.33 \text{ eV}$ und 0.31 eV . (f) Photoemissionsspektrum nach Anregung mit $\hbar\omega = 2.58 \text{ eV}$ als Vergleich. (Daten aus [21])

Zur Identifikation der Anfangs- und Endzustände wurde die Anregung in Abhängigkeit der Photonenenergie der Anregeimpulse untersucht. In Abbildung 4.7 sind Photoemissionsspektren des Dirac-Kegels in Sb_2Te_3 für unterschiedliche Photonenenergien bei einer Verzögerung von 50 fs zwischen Anrege- und Abfrageimpuls dargestellt. Die Daten in (a) und (b) sind dabei mit der gleichen Photonenenergie wie in Abschnitt 4.2.1 erzeugt. Die Anregung mit $\hbar\omega = 0,37 \text{ eV}$ erzeugt eine Besetzung nur bis zu einer Energie von $E - E_F = 0,35 \text{ eV}$ mit einer deutlichen Überhöhung bei $E - E_F \simeq 300 \text{ meV}$, die nach Einkühlen der Probe auf 80 K (Abbildung 4.7 (b)) noch

zusätzlich verstärkt wird. Diese Energieposition entspricht genau dem in Abschnitt 4.2.1 untersuchten Energiebereich der direkten optischen Anregung. Durch Kühlen der Probe mit flüssigem Stickstoff auf 80 K ist zusätzlich zur Besetzung im Dirac-Kegel eine Besetzung des Leitungsbands bei gleicher Energie zu erkennen.

Die energetische Position der Besetzungsüberhöhung ist direkt von der Energie $\hbar\omega_{\text{pump}}$ der Anregimpulse abhängig und wandert für kleinere $\hbar\omega_{\text{pump}}$ zu niedrigeren Energien (Abbildung 4.7 (d), (e)). Zusätzlich zeigen die Daten eine deutliche höhere Besetzung bei $-k_{\parallel}$ verglichen zur Besetzung bei $+k_{\parallel}$. Im Vergleich dazu zeigen eine Anregung mit sichtbaren Laserimpulsen mit anschließender Photoemission bei gleicher Photonenenergie $\hbar\omega_{\text{UV}}$ (Abbildung 4.7 (f)) und die Anregung mit 800 nm Laserimpulsen [188] weder die überhöhte Intensität bei einer spezifischen Energie, noch die Asymmetrie im k-Raum. Die Überhöhung bei einer spezifischen Energie und die Asymmetrie sind damit daher direkte Folgen der Anregung mit MIR-Impulsen.

Zur Bestimmung der an der Anregung beteiligten Zustände wurde die energetische Position der Besetzungsüberhöhung systematisch als Funktion von $\hbar\omega_{\text{pump}}$ gemessen und in Abbildung 4.8 aufgetragen. Die Energieposition zeigt sowohl bei 300 K als auch bei 80 K eine lineare Abhängigkeit von der Photonenenergie. Für Anregungen mit $\hbar\omega_{\text{pump}} < 0.25$ eV ist die Besetzung deutlich reduziert und es ist keine Überhöhung messbar.

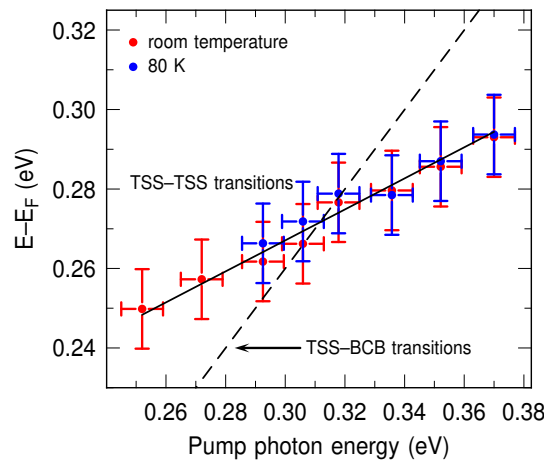


Abb. 4.8: Energieposition der Besetzungsüberhöhung als Funktion der Photonenenergie des MIR-Anregimpulses bei einer Probertemperatur von 80 K (blaue Punkte) und 300 K (rote Punkte). Die durchgezogene und gestrichelte Linie zeigen die simulierte Energieabhängigkeit für eine Anregung innerhalb des Dirac-Kegels bzw. eine Anregung vom Valenzband in den Dirac-Kegel.

Grundsätzlich sind für die Erzeugung der Besetzung im beobachteten Energiebereich mit den verwendeten MIR-Impulsen drei verschiedene Anregungspfade denkbar.

Der erste Pfad ist eine Anregung vom Valenzband in das Leitungsband der Volumenbandstruktur (Abbildung 4.9 (a)). Dieser Prozess kann aber aufgrund der energetischen Breite der beteiligten Zustände weder die Populationsüberhöhung bei einer spezifischen Energie erklären, noch ist eine deutliche Abhängigkeit von $\hbar\omega_{\text{pump}}$ zu erwarten. Die Besetzung im Dirac-Kegel muss für diesen Fall zusätzlich durch Streuung der Elektronen in den Oberflächenzustand hinein erfolgen. Dies ist durch die schnelle Dynamik und die k-Asymmetrie der Besetzung unwahrscheinlich. Dieser Anregungsprozess kann für die hier vorliegenden Daten damit ausgeschlossen werden.

Als zweiter möglicher Anregungspfad kommen eine Anregung vom besetzten Teil des Oberflächenzustands in das Leitungsband oder eine Anregung vom Valenzband direkt in den unbesetzten Teil des Dirac-Kegels in Frage. Da beide Pfade nur einen Kontinuumszustand nutzen, ist in diesem Fall eine lineare Abhängigkeit der Energieposition von $\hbar\omega_{\text{pump}}$ mit Steigung eins zu erwarten (gestrichelte Linie in Abbildung 4.8). Diese Steigung ist offensichtlich nicht mit den gemessenen Datenpunkte verträglich. Die Anregung vom Leitungsband in den Oberflächenzustand muss des Weiteren für beliebig kleine Anregungsenergien möglich sein. Die im Experiment beobachtete starke Reduzierung der Besetzung unterhalb einer bestimmten Photonenenergie steht hierzu im Widerspruch, sodass dieser gesamte Anregungspfad ausgeschlossen werden kann.

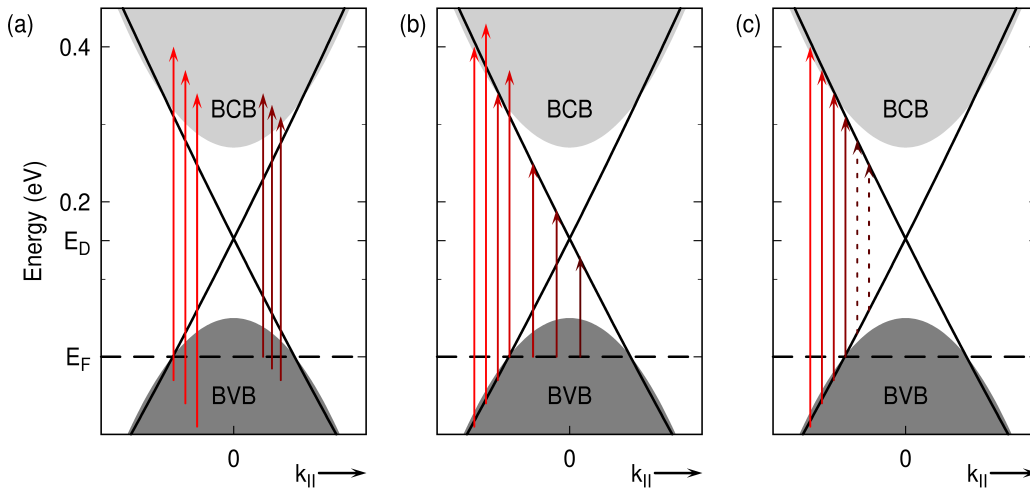


Abb. 4.9: Schemata der Anregung des Dirac-Kegels mit MIR-Anregeimpulsen für verschiedene Anregungspfade. (a) Anregung vom Valenzband (BVB) in das Leitungsband (BCB). (b) Anregung aus dem topologischen Oberflächenzustand in das Leitungsband (BCB) sowie Anregung vom Valenzband (BVB) in den oberen Teil des Dirac-Kegels. (c) Direkte optische Anregung vom unteren Teil des Dirac-Kegels in den oberen Teil. Die aufgrund fehlender Anfangsbesetzung nicht möglichen Übergänge sind gestrichelt gezeichnet.

Der dritte und letzte Anregungsprozess ist die direkte optische Anregung vom besetzten Teil des topologischen Oberflächenzustands in den unbesetzten Teil des Dirac-Kegels. Für diesen Prozess erwartet man eine intensive Anregung genau an denjenigen Energiepositionen, an denen die Energiedifferenz zwischen oberem und unterem Dirac-Kegel gerade $\hbar\omega_{\text{pump}}$ entspricht. Durch eine Kombination der gemessenen Dispersion des unbesetzten Teils des Dirac-Kegels (siehe Abschnitt 4.1) mit Daten des besetzten Teils aus [11] kann die erwartete Abhängigkeit der Position der Überhöhung berechnet werden. Aufgrund der linearen Dispersion des Dirac-Kegels ergibt sich damit auch für das als durchgezogene Linie in Abbildung 4.8 eingezeichnete Modell eine einfache lineare Abhängigkeit von $\hbar\omega_{\text{pump}}$. Ein Vergleich zwischen den experimentellen Daten und dem Modell zeigt eine exzellente Übereinstimmung. Weiterhin folgt aus dem Modell, dass Anregungen für Photonenenergien $\hbar\omega_{\text{pump}} < 0.27$ eV aufgrund unbesetzter Anfangszustände nicht mehr möglich sein sollten. Diese Vorhersage passt in guter Übereinstimmung zu der experimentell festgestellten starken Reduzierung der Besetzung für $\hbar\omega_{\text{pump}} < 0.25$ eV. Aufgrund der Lage der Fermienergie knapp unterhalb der Valenzbandoberkante ist in den untersuchten Proben eine direkte optische Anregung nur aus Bereichen des Oberflächenzustands in der Nähe zu Volumenzuständen möglich. Für die zur Verfügung stehenden Anfangszustände kann daher eine Hybridisierung des Oberflächenzustands mit den Volumenbändern nicht ausgeschlossen werden. Untersuchungen an Proben mit einer Fermienergie näher am Dirac-Punkt könnten zusätzliche Anfangszustände zur Verfügung stellen und damit eine direkte optische Anregung im Oberflächenzustands innerhalb der Volumenbandlücke, damit auch ohne Beeinflussung durch die Volumenbänder, ermöglichen.

Zusammenfassend kann aus den präsentierten Ergebnissen geschlossen werden, dass mit MIR-Impulsen eine direkte optische Anregung vom besetzten in den unbesetzten Teil des topologischen Oberflächenzustands möglich ist. Die Photoemissionsintensität innerhalb des Dirac-Kegels zeigt dabei eine starke Asymmetrie für unterschiedliche Parallelimpulsrichtungen. Da bei dem beobachteten direkten optischen Übergang keine Streueignisse zur Anregung des Dirac-Kegels notwendig sind, kann durch Manipulation der Laserimpulse gegebenenfalls eine direkte Kontrolle der Besetzung erreicht werden. Damit eröffnen sich durch Anregung mit Mittelinfrarotimpulsen neue Möglichkeiten der Erzeugung und Kontrolle von asymmetrischen Verteilungen im Dirac-Kegel, die im folgenden Kapitel 5 untersucht werden.

4.3 Zusammenfassung

Im zurückliegenden Kapitel wurden die unbesetzten Zustände der topologischen Isolatoren Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ mit Hilfe der zeit- und winkelaufgelösten 2PPE spektroskopiert und die Elektronendynamik im topologisch geschützten Oberflächenzustand untersucht. In beiden Materialien konnte nach Anregung mit Laserimpulsen

der Photonenenergie $\hbar\omega = 2,6\text{ eV}$ erstmalig der linear dispergierende Oberflächenzustand zweifelsfrei nachgewiesen werden. Die Dynamik im Dirac-Kegel ist für Verzögerungen bis 1 ps durch die indirekte Befüllung aus angeregten Volumenzuständen dominiert. Die Lebensdauer der angeregten Elektronen im Oberflächenzustand in der Bandlücke beträgt 1 ps und der Zerfall wird durch Streuung mit Elektronen im teilweise unbesetzten Volumen-Valenzband dominiert. In temperaturabhängigen Messungen konnte gezeigt werden, dass Elektron-Phonon-Streuung nur eine unbedeutende Rolle für die Elektronendynamik im Dirac-Kegel spielt, die Streuung aus dem Oberflächen- in die Volumenzustände und ein anschließender Transport der Elektronen entlang des Ladungsträgergradienten in den Festkörper jedoch einen wichtigen Zerfallskanal in Sb_2Te_3 und $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$ darstellt.

Im Vergleich zur Anregung mit Laserimpulsen aus dem sichtbaren Bereich des Spektrums zeigen Experimente mit MIR-Impulsen ($\hbar\omega \approx 0,35\text{ eV}$) eine vollständig veränderte Dynamik der Anregung des Oberflächenzustands. In den zeitaufgelösten Photoemissionsspektren kann bei Verwendung von MIR-Impulsen eine resonante, direkte optische Anregung aus dem besetzten Teil des Dirac-Kegels in den unbesetzten Teil, über den Dirac-Punkt hinweg, identifiziert werden. Dies ermöglicht eine Besetzung des Dirac-Kegels auf der Zeitskala der Pulsdauern der Laserimpulse. Aufgrund der niedrigen Photonenenergie findet keine zusätzliche Anregung der Volumenzustände statt und die indirekte Befüllung des Oberflächenzustands entfällt vollständig. Diese erstmalig im Rahmen dieser Arbeit beobachtete direkt optische Kopplung über den Dirac-Punkt hinweg [21] erzeugt mit p-polarisierten Laserimpulsen eine asymmetrische Anregung im Dirac-Kegel. Im anschließenden Kapitel 5 wird die Dynamik der asymmetrischen Anregung näher untersucht und es werden Möglichkeiten zur Kontrolle der Asymmetrie diskutiert.

Kapitel 5

Erzeugung und Kontrolle asymmetrischer Besetzungen in Sb_2Te_3

Die optische Anregung von Sb_2Te_3 mit MIR-Impulsen führt, wie in Abschnitt 4.2.2 diskutiert, zu einer Besetzung des topologischen Oberflächenzustands durch einen direkten optischen Übergang, ohne die bei höheren Photonenenergien oft beobachtete indirekte Bevölkering des Oberflächenzustands [12, 14, 19, 62, 187, 188]. Das folgende Kapitel wird in einem ersten Schritt durch eine Untersuchung der Dynamik der optisch direkt angeregten Elektronen in Abschnitt 5.1 aufzeigen, dass die beobachtete Intensitätsasymmetrie einer Asymmetrie der Besetzung entspricht, und zusätzlich sowohl die elastischen als auch die inelastischen Streuzeiten im Dirac-Kegel extrahieren. Im Anschluss werden die Möglichkeiten zur Kontrolle der Asymmetrie auf zwei verschiedene Weisen analysiert und der Mechanismus der Erzeugung der asymmetrischen Besetzung im Dirac-Kegel untersucht. Hierzu werden einerseits in Abschnitt 5.2 Experimente zur Asymmetrie als Funktion des Probenazimuts und andererseits in Abschnitt 5.3 Untersuchungen für eine feste Ausrichtung des Kristalls im Hinblick auf den linearen und zirkularen Dichroismus im Dirac-Kegel präsentiert. Abschließend wird in Abschnitt 5.4 die beobachtete Asymmetrie im Hinblick auf die mögliche Erzeugung und Kontrolle spinpolarisierter Ströme in Sb_2Te_3 diskutiert.

5.1 Elektronendynamik asymmetrischer Besetzungen in Sb_2Te_3

Die in Abbildung 5.1 für verschiedene Verzögerungen Δt zwischen dem MIR-Anrege- und dem UV-Abfrageimpuls gezeigte Photoemissionsintensität ermöglicht eine erste Einschätzung der Dynamik der asymmetrischen Intensität im Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 . Die Einfallsebene liegt für diese Messung nahezu in $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{K}$ -Richtung, die Elektronen werden senkrecht dazu in $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{M}$ -Richtung detektiert. Die Messungen sind, wenn nicht anders gekennzeichnet, bei Flüssigstickstoff Temperatur ($T = 80\text{ K}$) durchgeführt, um eine im Vergleich zur Raumtemperatur höhere Asymmetrie im Dirac-Kegel zu erzeugen (vergleiche Abbildung 4.7).

Für eine Verzögerung $\Delta t = 0$ ps ist in den Photoemissionsdaten für negative Parallelimpulse ($-k_{\parallel}$) eine schwache Intensität entlang des gesamten linear dispergierenden Oberflächenzustands zu erkennen. Für einen Bereich um $E - E_D = 0,15$ eV ist die Photoemissionsintensität deutlich überhört. Für positive Werte von k_{\parallel} zeigt sich hingegen nahezu keine Intensität im Dirac-Kegel, insbesondere ist keine Überhöhung messbar. Die Photoemissionsintensität im Dirac-Kegel zeigt damit bereits für zeitlich überlappende Laserimpulse eine asymmetrische Verteilung. Zusätzlich zum Dirac-Kegel ist im Photoemissionsspektrum ein parabolisch dispergierendes Band bei $E - E_D = 0,05$ eV sichtbar. Es handelt sich hierbei um den $n = 3$ Bildpotentialzustand. Im Vergleich zum topologischen Oberflächenzustand tauschen für die bezüglich der Vakuumenergie gebundenen Bildpotentialzustände die UV- und MIR-Impulse ihre Funktion. Der Zustand wird vom UV-Impuls besetzt und anschließend vom niederenergetischen MIR-Impuls ausgelesen. Aufgrund der geringen Photonenenergie von $\hbar\omega = 0,33$ eV können die ersten beiden Bildpotentialzustände nicht photoemittiert werden.

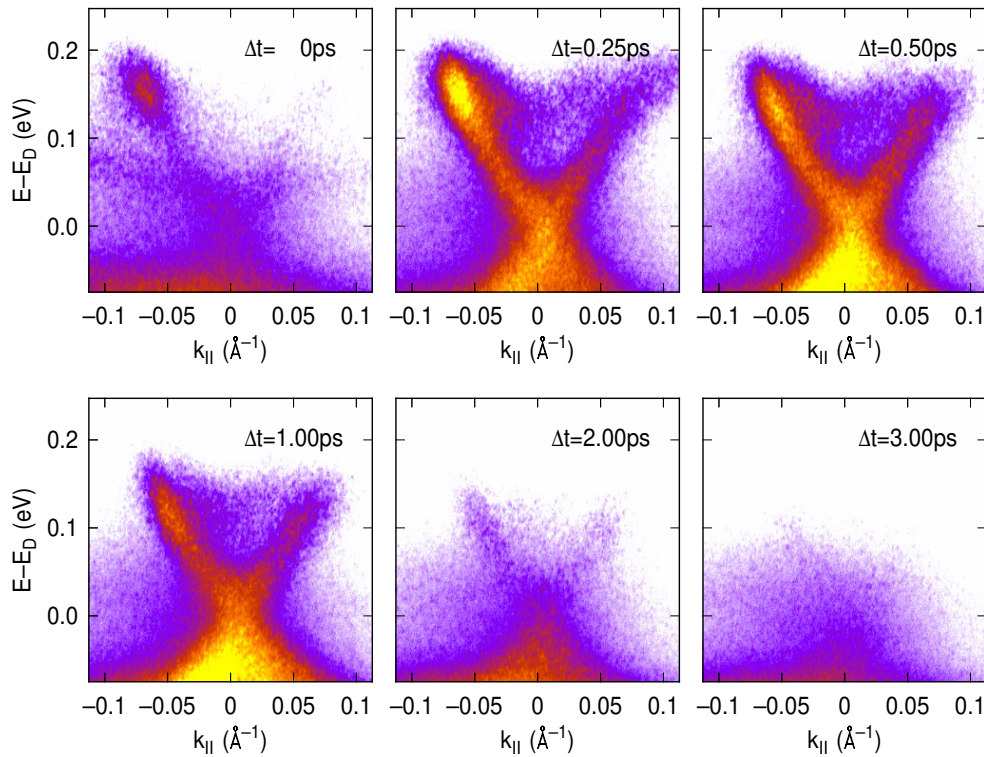


Abb. 5.1: Photoemissionsdaten des transient besetzten topologischen Oberflächenzustands in Sb_2Te_3 für verschiedene Verzögerungen Δt zwischen dem 0.33 eV Anrege- und dem 5.1 eV Abfrageimpuls. Die schon bei $\Delta t = 0$ ps erkennbare Asymmetrie erreicht nach 0,25 ps ihr Maximum. Ab $\Delta t = 1$ ps ist die Besetzung nahezu symmetrisch. Das ausschließlich bei $\Delta t = 0$ ps erkennbare parabolische Band bei $E - E_D = 0,075$ eV ist der $n = 3$ Bildpotentialzustand. Eine Animation der Daten findet sich in [194, 195].

Die Besetzung im direkt optisch angeregten Teil des Dirac-Kegels erreicht ihr Maximum um $\Delta t = 0,25 \text{ ps}$ und hat ihren Schwerpunkt an derselben Energieposition wie bei $\Delta t = 0 \text{ ps}$. Für positive Parallelimpulse $+k_{\parallel}$ ist die Photoemission aus dem entsprechenden Energiebereich um $E - E_D \approx 0,15 \text{ eV}$ leicht angestiegen, jedoch weiterhin signifikant kleiner als für $-k_{\parallel}$. Die Intensität für Energien unterhalb der direkten Anregung ist für beide Parallelimpulsrichtungen angestiegen.

Für $\Delta t = 0,5 \text{ ps}$ nimmt die Besetzung im Bereich der direkten Anregung für $-k_{\parallel}$ ab und gleicht sich der Intensität bei niedrigeren Energien im Dirac-Kegel an. Der Schwerpunkt der Verteilung verlagert sich um 25 meV in Richtung niedrigerer Energien. Im Gegensatz dazu *steigt* die Intensität in $+k_{\parallel}$ -Richtung an und die Asymmetrie zwischen den entgegengesetzten Impulsrichtungen wird kleiner und gleicht sich aus. Für Verzögerungen ab $\Delta t = 1 \text{ ps}$ ist die Asymmetrie nahezu vollständig abgeklungen und die Intensität im Dirac-Kegel nimmt symmetrisch auf einer Pikosekunden-Zeitskala ab. Die unterschiedliche Dynamik für $\pm k_{\parallel}$ belegt, dass der asymmetrischen Intensitätsverteilung auch eine asymmetrische Besetzung des Oberflächenzustands zugrunde liegt. Dies ist darin begründet, dass nur eine Asymmetrie und der anschließende Ausgleich der Besetzung durch Streuung aus Zuständen höherer in Zustände niedriger Besetzung zur beobachteten unterschiedlichen Dynamik im Energiebereich der direkten optischen Anregung führen kann. Eine Asymmetrie im Photoemissionsprozess für $\pm k_{\parallel}$, zum Beispiel aufgrund der experimentellen Geometrie wie in Kapitel 4.1.2, würde hingegen ausschließlich eine relative Änderung der Intensität für $\pm k_{\parallel}$ ohne Unterschiede in der Zeitabhängigkeit bewirken.

Die beobachtete, in $\pm k_{\parallel}$ unterschiedliche Dynamik und der Vergleich zu Anregungen im sichtbaren Spektralbereich (siehe Abbildung 4.7 (e)) zeigen somit, dass die Anregung mit MIR-Impulsen neben der schnellen, direkten optischen Anregung zusätzlich eine asymmetrische Besetzung erzeugt und damit verbunden eine richtungsabhängige Dynamik im Dirac-Kegel beobachtet werden kann. Dies ermöglicht nach Anregung mit MIR-Impulsen einzigartige Untersuchungen, die in dieser Art in bisherigen Experimenten mit höheren Photonenenergien der Anregungsimpulse [12, 14–19, 67, 187] nicht durchgeführt werden konnten.

In Abbildung 5.2 ist im Rahmen einer detaillierten Analyse der Anregungs- und Zerfalldynamik die Besetzung entlang des Dirac-Kegels für unterschiedliche Energien (wie in Abbildung 5.2 (a) skizziert) als Funktion der Verzögerung Δt ausgewertet. Die p-polarisierten Laserstrahlen fallen in $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} -Richtung auf die Probe und liegen damit in einer Spiegelebene des Kristalls. Die Elektronen werden senkrecht dazu entlang $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} detektiert. In Abbildung 5.2 (c) ist die Intensität $I_{\pm k}$ (rote/blau Linien) und die Differenz $I_{-k} - I_{+k}$ (grüne Linie) für die fünf in (a) gezeigten Regionen dargestellt. Für alle Regionen zeigt die Besetzung einen schnellen Anstieg innerhalb der Zeitauflösung von $\approx 200 \text{ fs}$ und einen anschließenden Zerfall auf einer Pikosekunden-Zeitskala. Die anfänglich unterschiedliche Intensität für $\pm k_{\parallel}$ gleicht sich dabei aus, bevor die Besetzung im jeweiligen Energiebereich vollständig zerfallen ist. Der schnelle Anstieg ist

dabei für die Regionen nahe der direkten optischen Anregung (Region 5) am stärksten ausgeprägt und wird für die Regionen bei niedrigerer Energie (Regionen 1-3) von einer verzögerten indirekten Befüllung aus energetisch höher liegenden Zuständen überlagert. Für Energien nahe des Dirac-Punktes wird aufgrund dieser Streuung in die Zustände die maximale Besetzung für Verzögerungen um 500 fs erreicht. Für die Region der überhöhten direkten optischen Anregung (Region 5 bei $-k_{\parallel}$) ist keine indirekte Befüllung messbar. Die schnelle Anregung des gesamten Dirac-Kegel steht in starkem Gegensatz zur nach Anregung mit kürzeren Wellenlängen beobachteten, substantiell verzögerten, indirekten Befüllung [14–19, 67, 187].

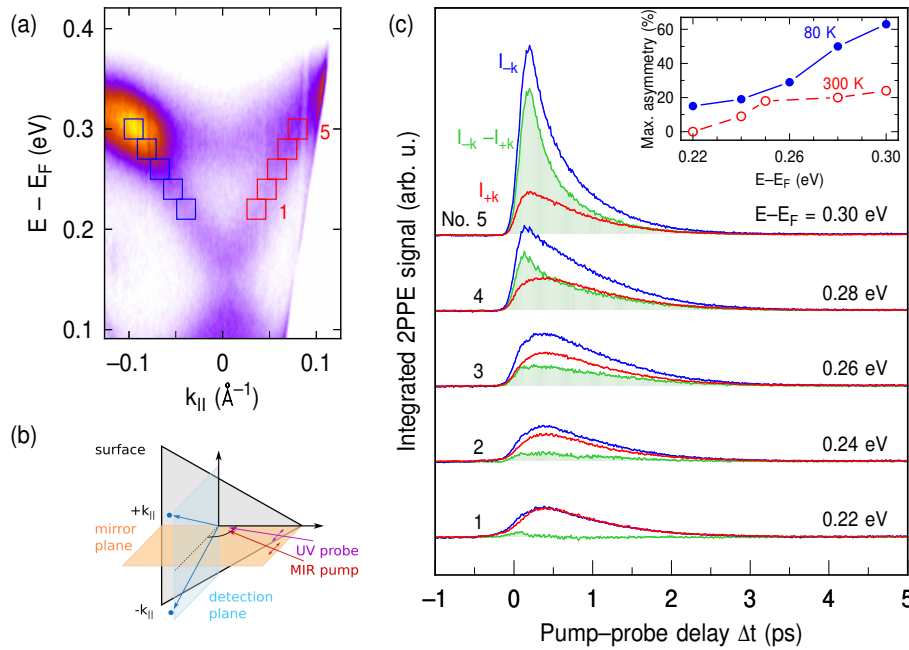
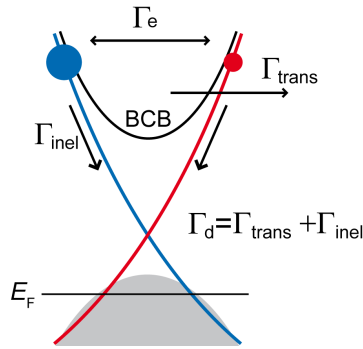


Abb. 5.2: (a) Winkelaufgelöstes Photoemissionsspektrum von Sb_2Te_3 für 0,37 eV und 5,16 eV Laserimpulse bei einer Verzögerung von 50 fs mit den in (c) ausgewerteten Integralregionen. (b) Skizze der experimentellen Geometrie, in der die Einfallsebene in einer Spiegelebene der C_{3v} -Symmetrie des Kristalls (Dreieck) liegt. Die Photoelektronen werden senkrecht dazu entlang $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} detektiert. (c) Zeitaufgelöste Photoemissionsintensität I_{-k} (blau) und I_{+k} (rot) sowie die Differenz $\Delta I = I_{-k} - I_{+k}$ (grün) für die in (a) gekennzeichneten Regionen entlang des Oberflächenzustands. Das Inset zeigt das Maximum der Asymmetrie $A = \Delta I / (I_{-k} + I_{+k})$ als Funktion der Energie für unterschiedliche Proben temperaturen.

Die Stärke und Dynamik der Asymmetrie $A = (I_{-k} - I_{+k}) / (I_{-k} + I_{+k})$ innerhalb des Dirac-Kegels besitzt eine signifikante Energieabhängigkeit. Im Inset der Abbildung 5.2 (c) ist jeweils der Maximalwert der zeitabhängigen Asymmetrie für eine Proben temperature von 300 K (offene rote Symbole) und für 80 K (geschlossenen blaue Symbole) dargestellt. Die Asymmetrie nimmt dabei vom Punkt der direkten optischen Anregung bei 0,3 eV in Richtung des Dirac-Punktes kontinuierlich ab. Die Asymmetrie ist für gekühlte Proben um einen Faktor 3 stärker ausgeprägt. Bei Raum temperature

geht die Asymmetrie im Dirac-Kegel bereits deutlich oberhalb des Dirac-Punktes auf 0 zurück, während bei 80 K auch nahe des Dirac-Punktes zum Teil noch eine kleine Asymmetrie messbar bleibt. Die Dynamik von A folgt direkt der Dynamik von $I_{\pm k}$ und zeigt damit für Energien unterhalb der direkten optischen Anregung auch ein um bis zu 500 fs verzögertes Maximum.

Das Auftreten einer asymmetrischen Besetzung des Dirac-Kegels überrascht auf den ersten Blick, da für die hier diskutierten Daten die Einfallsebene in einer Spiegelebene des Kristalls liegt (siehe Abbildung 5.2 (b)) und die senkrecht dazu gemessene Besetzung in $\pm k_{\parallel}$ daher symmetrisch sein müsste. Die beobachtete Asymmetrie deutet daher einen Bruch der dreizähligen Oberflächensymmetrie an. Mögliche Gründe dafür könnten eine Veränderung des Abstands oder der Orientierung der ersten Lage bezüglich des Festkörpers oder ein Symmetriebruch durch den nicht senkrechten Einfall der Laserstrahlen sein. Faktoren wie eine Symmetriereduktion durch orientierte Stufen auf der Oberfläche oder nicht perfekte azimuthale Ausrichtung können insbesondere im Hinblick auf die im nachfolgenden Kapitel 5.2 diskutierten Ergebnisse der azimuthalen Abhängigkeit der Asymmetrie nahezu ausgeschlossen werden.



$$\begin{aligned} \frac{dn_+}{dt} &= a\delta(t) - \Gamma_e n_+ + \Gamma_e n_- - \Gamma_d n_+ \\ \frac{dn_-}{dt} &= b\delta(t) - \Gamma_e n_- + \Gamma_e n_+ - \Gamma_d n_- \\ \frac{d\Delta n}{dt} &= (b - a)\delta(t) - (2\Gamma_e + \Gamma_d)\Delta n \end{aligned} \quad (5.1)$$

mit $\Delta n = n_- - n_+$

Abb. 5.3: Schema der Zerfallskanäle mit zugehörigen Streuraten Γ für angeregte Elektronen im Dirac-Kegel und das zugehörige Ratengleichungsmodell. Die Besetzungen n_{\pm} für $\pm k_{\parallel}$ (rote/blaue Kugel) streuen untereinander elastisch mit der Streurrate Γ_e und zerfallen sowohl durch Streuung in das Leitungsband (BCB) und anschließenden Transport in den Festkörper (Γ_{trans}) als auch durch inelastische Streuung in energetisch niedrigere Zustände im Dirac-Kegel (Γ_{inel}).

Für die Bestimmung der Lebensdauer der angeregten Elektronen im Dirac-Kegel wird ein Ratengleichungsmodell für die einzelnen Streuprozesse aus und in die untersuchten Zustände aufgestellt. Die Existenz der Asymmetrie in $\pm k_{\parallel}$ erlaubt es neben den inelastischen Streuprozessen in Zustände niedrigerer Energie auch die elastische Streuung zwischen zwei Zuständen gleicher Energie bei entgegengesetztem Parallelimpuls zu modellieren. In Summe werden für jeden Zustand, wie in Abbildung 5.3 skizziert, drei Streuprozesse modelliert. Die Zustände bei $\pm k_{\parallel}$ streuen Elektronen untereinander elastisch mit der Rate Γ_e . Aufgrund des Spin Momentum Locking ist für eine Streuung in entgegengesetzte Richtung ein Spinflip nötig. Die 180°-Rückstreuung

von $+k_{\parallel}$ nach $-k_{\parallel}$ kann daher nicht direkt erfolgen, sondern muss über mehrere aufeinanderfolgende Streuprozesse stattfinden. Die Rate Γ_e ist daher die effektive Rate einer Summe mehrerer Streuprozesse entlang des Dirac-Kegels. Je nach Verhältnis der Besetzungen bei $\pm k_{\parallel}$ werden in Summe Elektronen von $+k_{\parallel}$ nach $-k_{\parallel}$ oder in die andere Richtung gestreut. Sobald die Asymmetrie zwischen den Zuständen durch die elastische Streuung ausgeglichen wurde, bleibt allein die inelastische Streuung Γ_d als Streukanal zurück. Diese setzt sich als Summe aus dem durch Diffusion hervorgerufenen Transport der Elektronen von der Oberfläche in den Festkörper (Γ_{trans}) nach Interbandstreuung in das Leitungsband (wie bereits bei optischer Anregung in Kapitel 4.1.2 beobachtet) und der inelastischen Intrabandstreuung in Zustände niedrigerer Energie im Dirac-Kegel (Γ_{inel}) zusammen. Im Ratengleichungsmodell geben a und b die Stärke der Anregung in den sich gegenüberliegenden Zuständen an und der Anregungsimpuls wird durch $\delta(t)$ als Gaußprofil in das Modell eingebunden.

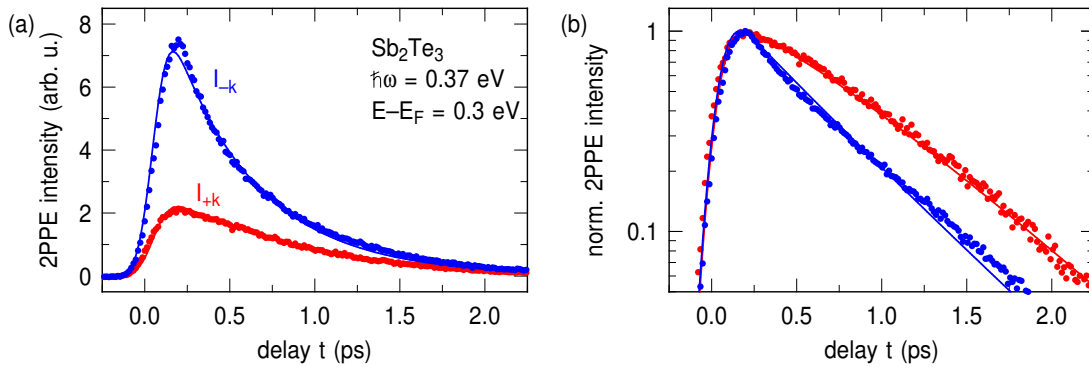


Abb. 5.4: Die zeitaufgelöste Intensität I_{-k} (blau) und I_{+k} (rot) der Region 5 aus Abbildung 5.2 mit in (a) linearer und in (b) normiert mit logarithmischer Achse für 80 K Probentemperatur. Die durchgezogenen Linien sind eine Anpassung des Ratengleichungsmodells 5.1 an die Daten mit $a/b = 0.2$, $\Gamma_e = 0.4 \text{ ps}^{-1}$ und $\Gamma_d = 1.6 \text{ ps}^{-1}$. In der logarithmischen Darstellung ist der beschleunigte (verlangsamte) Zerfall von I_{-k} (I_{+k}) bis $t = 0,5 \text{ ps}$ und der anschließend gleich schnelle Zerfall beider Intensitäten zu erkennen.

In Abbildung 5.4 ist das Ergebnis der Anpassung des Ratengleichungsmodells an die Daten in Region 5 der Abbildung 5.2 in (a) linearer und in (b) mit normalisierten Daten in logarithmischer Skala als Funktion der Verzögerung Δt gezeigt. Das Ratengleichungsmodell kann mit einem einzigen Parametersatz die Dynamik in beiden Parallelimpulsrichtungen sehr gut beschreiben. Neben dem offensichtlichen Unterschied der Intensitäten $I_{\pm k}$ zeigt die Dynamik in den ersten 750 fs deutliche Unterschiede in den verschiedenen Richtungen des Parallelimpulses. Betrachtet man die Dynamik der normalisierten Intensitäten in logarithmischer Darstellung in 5.4 (b), so ist der Anstieg der Besetzung für $-k_{\parallel}$ (blaue Punkte) und $+k_{\parallel}$ (rote Punkte) identisch bis zum Erreichen der maximalen Intensität bei $t = 200 \text{ fs}$. Anschließend nimmt die Besetzung der beiden Regionen jedoch mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten ab. Die Region hoher Besetzung bei $-k_{\parallel}$ (blaue Kurve) zerfällt dabei anfangs schneller als die

Besetzung bei $+k_{||}$ (rote Kurve), verlangsamt sich dann und bleibt ab ≈ 750 fs nahezu konstant. Im Gegensatz dazu zerfällt die Region niedriger Besetzung anfangs langsamer und der Zerfall beschleunigt sich anschließend, bis dieser ab ≈ 750 fs konstant und mit gleicher Geschwindigkeit wie in der Region hoher Besetzung stattfindet. Dieses Verhalten lässt sich damit erklären, dass im Zeitbereich bis 750 fs die elastische Streuung den dominanten Streukanal darstellt. Aufgrund der starken Asymmetrie der Besetzung werden dabei mehr Elektronen aus der Region hoher Besetzung in den Bereich niedriger Besetzung gestreut als in die Gegenrichtung. Es findet daher effektiv eine Umverteilung der Elektronen, im hier beschriebenen Fall von $-k_{||}$ nach $+k_{||}$, statt. Die Region niedrigerer Besetzung zerfällt dadurch mit scheinbar längerer Lebensdauer. Sobald die Asymmetrie durch die elastische Streuung deutlich reduziert wurde, stellt die inelastische Streuung den Hauptstreukanal dar. Da dieser nicht von der Besetzung im einzelnen Zustand abhängt, zerfallen die gegenüberliegenden Regionen mit gleicher Zerfallskonstante. Dieses Verhalten ist dabei für alle Azimut-Ausrichtungen des Kristalls zu beobachten, sobald die optische Anregung eine asymmetrische Besetzung erzeugt.

Aus der Anpassung des Ratengleichungsmodells an die Messdaten lassen sich für Messungen bei Raumtemperatur (300 K) und bei 80 K die in Tabelle 5.1 aufgelisteten Lebensdauern $\tau = 1/\Gamma$ ermitteln. Die inelastische Lebensdauer τ_d ist unabhängig von der Temperatur deutlich geringer als die elastische Lebensdauer τ_e . Die effektive Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren im teilweise befüllten Valenzband der p-dotierten Probe stellt einen sehr effektiven Streukanal für den inelastischen Zerfall zur Verfügung. Die Abnahme der inelastischen Lebensdauer nach Einkühlen der Probe kann, wie nach Anregung mit sichtbaren Laserimpulsen beobachtet, durch eine Erhöhung von Γ_{trans} aufgrund des effektiveren Transports in das Volumen erklärt werden. Im Gegensatz dazu zeigt τ_e keine signifikante Temperaturabhängigkeit. Da die Debye-Temperatur ($T_D = 160$ K [191, 192]) zwischen den beiden untersuchten Temperaturen liegt, kann eine signifikante Beteiligung von Phononen an der elastischen Streuung ausgeschlossen werden. Mögliche Beiträge könnten neben der Streuung an Defekten oder Stufen an der Oberfläche aufgrund des hohen Wellenfunktionsüberlapps die Streuung mit Elektronen im Leitungsband sein.

	80 K	300 K	$n = 1$ Cu(100)
b:a	5:1	3:2	
$\tau_e = \Gamma_e^{-1}$	2,5 ps	2,5 ps	10 fs
$\tau_d = \Gamma_d^{-1}$	0,6 ps	0,9 ps	35 fs

Tab. 5.1: Die extrahierten elastischen und inelastischen Lebensdauern τ_e , τ_d im topologischen Oberflächenzustand für 300 K und 80 K sind im Vergleich zur Lebensdauer im ersten Bildpotentialzustand $n = 1$ auf Cu(100) [13] um mehrere Größenordnungen länger.

Aus dem Ratengleichungsmodell 5.1 kann zusätzlich zur Beschreibung der Zustände im Dirac-Kegel eine weitere Differentialgleichung für die Dynamik der Asymmetrie $\Delta n \propto I_{-k} - I_{+k}$ abgeleitet werden. Man erkennt, dass für die Asymmetrie die elastische Streuung Γ_e einen im Vergleich zur inelastischen Streuung Γ_d doppelt so starken Einfluss besitzt. Die Auftragung der einzelnen Beiträge des Zerfalls der Asymmetrie in Abbildung 5.5 zeigt diesen Unterschied anschaulich. Hierzu sind die experimentell bestimmte Asymmetrie (grüne Punkte) und das Ergebnis der Anpassung des Modells 5.1 (grüne Linie) eingezeichnet. Die Übereinstimmung zwischen Modell und den Daten ist auf dem gleichen hohen Niveau wie auch bei der Modellierung der Intensitäten $I_{\pm k}$ in Abbildung 5.4. Zusätzlich zum vollständigen Modell sind die elastische (rote Linie) und die inelastische Komponente (schwarze Linie) des Zerfalls der Asymmetrie über die Daten gelegt. Der im Vergleich zur elastischen Komponente signifikant schnellere Abfall durch den inelastischen Beitrag zeigt, dass der Zerfall der Asymmetrie in den hier untersuchten Proben durch den inelastischen Zerfall dominiert wird. Um die hohe elastische Lebensdauer der Elektronen im Oberflächenzustand für Untersuchungen oder Anwendungen nutzbar zu machen, ist daher eine Erhöhung der inelastischen Lebensdauer unabdingbar.

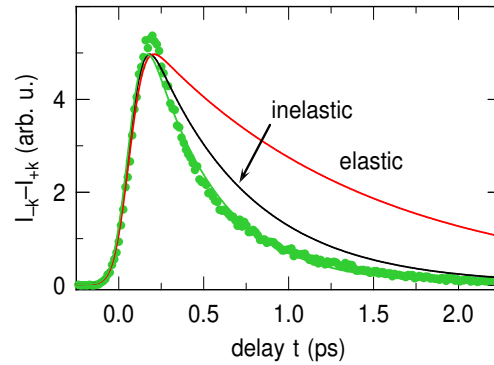


Abb. 5.5: Die Asymmetrie im Bereich der direkten optischen Anregung (grüne Punkte) aus Abbildung 5.4 mit dem Ergebnis der Anpassung des Ratengleichungsmodells 5.1 (grüne Linie). Die Beiträge der inelastischen Streuung (schwarze Linie) und der elastischen Streuung (rote Linie) zum Zerfall der Asymmetrie sind zusätzlich separat eingezeichnet.

Die aus der Anpassung des Modells bestimmte elastische Lebensdauer von $\tau_e = 2,5$ ps ist deutlich länger als die inelastischen Lebensdauern von $\tau_d = 0,6$ ps (80 K) und 0,9 ps (300 K). Die innerhalb des Dirac-Kegels aufgrund des Spin Momentum Locking reduzierte Rückstreuung scheint damit einen direkten Einfluss auf die elastische Streuung und damit auch auf die Dynamik im topologischen Oberflächenzustand auszuüben. Dies wird besonders in einem Vergleich mit den um mehrere Größenordnungen kürzeren inelastischen und elastischen Lebensdauern im $n = 1$ Bildpotentialzustand der Cu(100) Oberfläche [13] in Tabelle 5.1 deutlich. Während der Unterschied der inelastischen Lebensdauern τ_d zum Teil über den unterschiedlichen Phasenraum für

den Zerfall [110, 196] in beiden Systemen erklärt werden kann, ist dieses Argument nicht einfach auf die elastischen Streuprozesse übertragbar. Sowohl im Falle der Bildpotentialzustände auf Kupfer als auch im topologischen Oberflächenzustand wird der elastische Zerfall der Streuung an Stufen und Defekten an der Oberfläche zugeordnet. Es ist davon auszugehen, dass die durch Sputter- und Heizzyklen präparierte Metalloberfläche signifikant weniger Defekte besitzt als die mittels Abziehen eines Klebestreifens präparierte Oberfläche des topologischen Isolators. Die signifikant niedrigere Streurate trotz deutlich höherer Defektdichte im topologischen Isolator zeigt damit die Konsequenzen der Spinstruktur und des daraus abgeleiteten Verbots der direkten Rückstreuung auffällig deutlich.

Die hohe elastische Lebensdauer und die reduzierte Streuung der Elektronen im Oberflächenzustand macht topologische Isolatoren damit auch für Anwendungen, zum Beispiel für die Nutzung in Spintronik-Bauteilen, interessant. Hierfür muss jedoch zuerst eine Möglichkeit zur Kontrolle der Asymmetrie gefunden werden. Im Hinblick auf den Anwendungsfall kann die hier im Experiment beobachtete vergleichsweise niedrige inelastische Lebensdauer unter Umständen durch die Verwendung von Dünnschichtproben mit niedrigerer Defektkonzentration oder durch geschickte Wahl der Dotierung [62] deutlich verlängert werden.

5.2 Azimutabhängigkeit der asymmetrischen Besetzung

Die in den vorangegangenen Kapiteln präsentierten Experimente untersuchen die asymmetrische Besetzung des Dirac-Kegels ausschließlich in den zwei Hochsymmetrierichtungen $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} und $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} , die Besetzungsüberhöhung wurde bisher ausschließlich in $-k_{\parallel}$ -Richtung beobachtet. Im folgenden Abschnitt wird der Einfluss der Kristallgeometrie bezüglich der Einfallsebene auf die asymmetrische Besetzung untersucht. Mit dem Ziel eine Kontrolle über die Stärke und Richtung der Asymmetrie zu erhalten wurden hierzu 2PPE-Untersuchungen für verschiedene Werte des Probenazimut θ durchgeführt.

Zum Vergleich der Abhängigkeit der Asymmetrie im Oberflächenzustand von der Einstrahl- und Detektionsrichtung ist in Abbildung 5.6 die Photoemissionsintensität für vier unterschiedliche Werte des Probenazimuts θ gezeigt. Das Einstellen des Probenazimuts erfolgte durch Drehen der Probe, teilweise im an der Kammer angeschlossenen Transfersystem bei 10^{-9} mbar oder außerhalb der Kammer an Atmosphäre mit anschließender neuer Präparation der Oberfläche im UHV. Die Bestimmung der absoluten Ausrichtung des Kristalls bezüglich der Einfallsebene erfolgte durch LEED Untersuchungen, ergänzt durch die Bestimmung der relativen Probenorientierung über Markierungen am Kristall. In den Schemata der experimentellen Geometrie in Abbildung 5.6 ist jeweils die Lage der dreizähligen Oberfläche in Bezug zur festen

Einfallebene (orange Fläche) und der dazu senkrechten Detektionsebene (blaue Fläche) skizziert. Die Photoemissionsspektren wurden zum Zeitpunkt der maximalen Asymmetrie (a,b,d) oder der maximalen Anregung (c) im Dirac-Kegel, bei Verzögerungen von 200 fs zwischen MIR-Anrege- und UV-Abfrageimpuls aufgenommen. Alle vier Spektren zeigen den transient besetzten linear dispersierenden Oberflächenzustand. Das parabolisch dispersierende Leitungsbandminimum hebt sich je nach Intensität im Dirac-Kegel unterschiedlich deutlich vom Hintergrund ab und ist in (c) besonders stark ausgeprägt. Für die vier Werte des Probenazimuts zeigt sich ein erheblicher Unterschied in der Verteilung der angeregten Elektronen im Dirac-Kegel. Während sich zwar grundsätzlich in allen vier Spektren eine deutliche Überhöhung durch die direkte optische Anregung zeigt, wechselt die Position der Überhöhung von $-k_{||}$ nach $+k_{||}$ oder ist symmetrisch in beiden Parallelimpulsrichtungen zu beobachten.

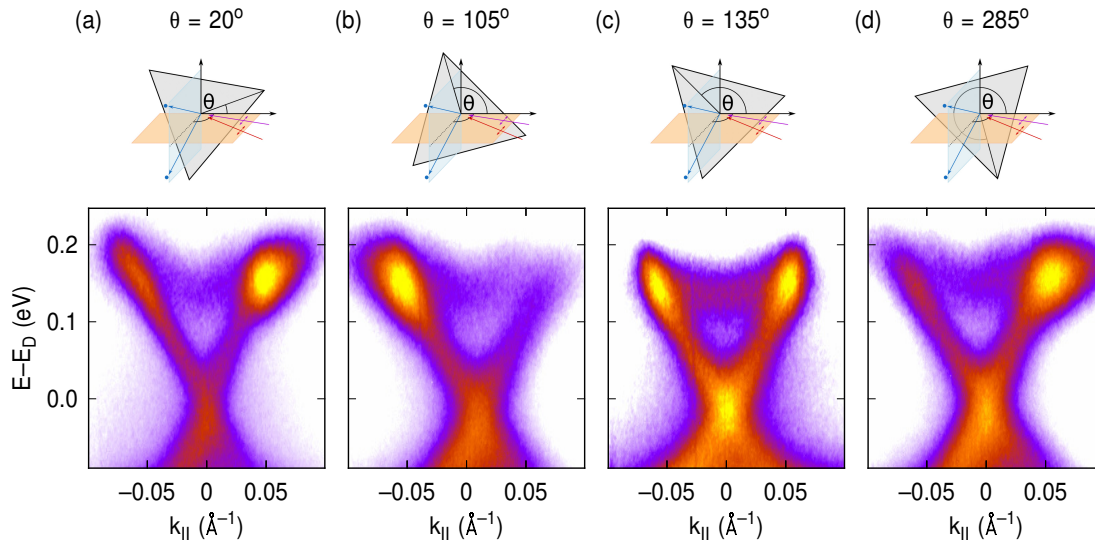


Abb. 5.6: Winkelaufgelöste Photoemissionsspektren des transient besetzten Dirac-Kegels in Sb_2Te_3 für eine Verzögerung von 200 fs zwischen MIR-Anrege- und UV-Abfrageimpuls. Je nach gewähltem Probenazimut θ sind die Einfallebene (orange Fläche) und die Detektionsebene (blaue Fläche) gegenüber dem dreizähligen Kristall (graues Dreieck) unterschiedlich ausgerichtet und die beobachtete Asymmetrie ändert das Vorzeichen (a,b,d) oder verschwindet vollständig (c).

Für das Photoemissionsspektrum in (a) wurde die Probe um 20° im Vergleich zu Abbildung 5.2 in Richtung $\bar{\Gamma}$ - \bar{M} gedreht. Dieses Drehen der Probe verschiebt die überhöhte Anregung von $-k_{||}$ nach $+k_{||}$ und die Asymmetrie $A = (I_{-k} - I_{+k}) / (I_{-k} + I_{+k})$ wechselt im Vergleich zur Emission entlang $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} ihr Vorzeichen. Auffällig ist weiterhin, dass die Intensität im schwach angeregten Teil des Dirac-Kegels bei $-k_{||}$ zwar weiterhin geringer als bei $+k_{||}$ ist, die Intensität bei $-k_{||}$ aber im Vergleich zu (b) und auch (d) deutlich höher ist. Weiteres Drehen der Probe zu $\theta = 105^\circ$ verschiebt die überhöhte

optische Anregung wieder nach $-k_{||}$. Der Wechsel der Asymmetrie verläuft dabei stetig und für bestimmte Werte des Azimuts zeigen sich Nulldurchgänge in der Asymmetrie. In (c) ist exemplarisch für $\theta = 135^\circ$ die Situation verschwindender Asymmetrie im angeregten Dirac-Kegel gezeigt. Es ist wichtig zu betonen, dass die symmetrische Intensität in $\pm k_{||}$ sich sofort mit der direkten optischen Anregung einstellt und sich daher nicht aus einer asymmetrischen Verteilung durch Streuung innerhalb des Dirac-Kegels entwickelt. Das Verhältnis der Intensität der überhöhten Anregung im Dirac-Kegel zur Intensität am Dirac-Punkt ist im Vergleich zu den anderen gezeigten Azimutwerten signifikant kleiner. Die Überhöhung durch die direkte optische Anregung ist für diesen Azimut insgesamt nicht mehr so stark ausgeprägt. In Teilabbildung (d) beträgt der Probenazimut $\theta = 285^\circ$, die Asymmetrie wechselt im Vergleich zum Spektrum für $\theta = 105^\circ$ das Vorzeichen. Der Unterschied des Azimuts zwischen (b) und (d) beträgt genau 180° und die Auswertung aller gemessenen Werte des Azimuts zeigt, dass das Drehen der Probe um 180° immer zu einem Vorzeichenwechsel der gemessenen Asymmetrie führt.

Die in Abbildung 5.6 gezeigten Wechsel in der Asymmetrie der Photoemissionsintensität wurden hinsichtlich der Elektronendynamik wie in Abbildung 5.2 ausgewertet. Für alle untersuchten Werte des Azimuts kann die Elektronendynamik mit dem Ratengleichungsmodell 5.1 wiedergegeben werden. Bei asymmetrischer Photoemissionsintensität ist immer eine Streuung aus dem Zustand hoher in den Zustand niedriger Intensität und die damit verbundene unterschiedliche Dynamik für $\pm k_{||}$ zu beobachten. Für verschwindende Asymmetrie wie in 5.6 (c) ist die Dynamik in beiden Impulsrichtungen identisch. Die Veränderung der Asymmetrie als Funktion des Azimuts ist damit auf eine Veränderung der Besetzung im Oberflächenzustand zurückzuführen. Ein Einfluss der Ausrichtung des Kristalls auf die Photoemission mit dem UV-Laserimpuls scheint nicht vorhanden zu sein oder ist vernachlässigbar klein.

In der Polarabbildung 5.7 sind alle azimutabhängigen Messungen an Sb_2Te_3 zusammengefasst. Hierfür wurde für jede einzelne Messung zu einem bestimmten θ die Intensität entlang des Dirac-Kegels zum Zeitpunkt der maximalen Asymmetrie ausgewertet. Um eine Vergleichbarkeit der Asymmetrie zu ermöglichen, sind die Messungen zu verschiedenen θ auf die Intensität im Dirac-Punkt normiert und anschließend in den Polarplot als Funktion des Azimuts und des Parallelimpulses $k_{||}$ eingetragen. Zwischen den diskreten θ Werten ist die Intensität interpoliert, im Bereich um 45° und 225° existieren keine Messungen. Die grau gestrichelten Kreise in der Abbildung markieren $k_{||}$ in $0,01\text{\AA}^{-1}$ Abstufungen. Die markierten Hochsymmetrierichtungen \bar{K} , \bar{M} und \bar{M}' beziehen sich auf die Richtung, unter der die im Detektor gemessenen Elektronen photoemittiert werden.

Die Verteilung entlang des Dirac-Kegels in Abbildung 5.7 zeigt eine besonders hohe Intensität im Bereich der direkten optischen Anregung bei $0,05\text{\AA}^{-1}$ für $\theta = -15^\circ$ und 100° . Die um $\theta = 225^\circ$ bestehende Lücke in den Daten wird von Bereichen hoher oder ansteigender Intensität eingerahmt. Für die beobachtete Asymmetrie im Ober-

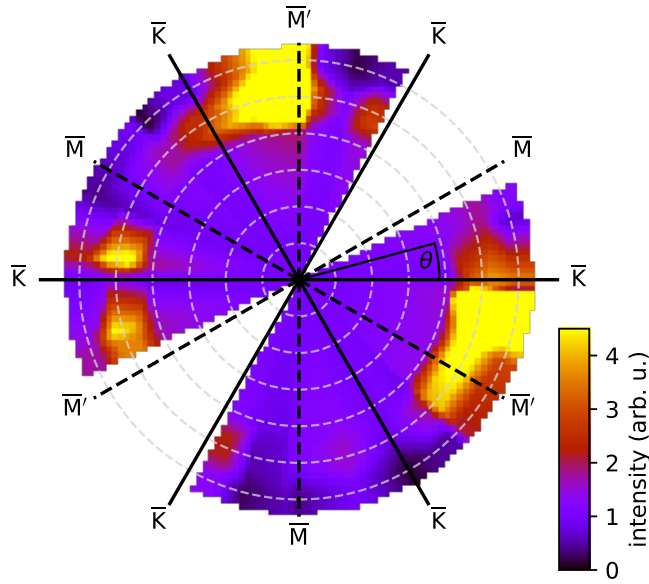


Abb. 5.7: Aus Einzelmessungen zusammengesetzte Darstellung der Intensität entlang des Oberflächenzustands als Funktion des Probenazimuts θ und $k_{||}$. Die Messungen wurden zum Zeitpunkt maximaler Intensität der direkten Anregung aufgenommen und einzeln auf die Intensität im Dirac-Punkt zu diesem Zeitpunkt normiert. Für bestimmte Werte von θ ist die Hochsymmetrierichtung eingezeichnet, unter der die Elektronen detektiert werden. Die grau gestrichelten Linien teilen den Parallelimpuls $k_{||}$ in $0,01 \text{ \AA}^{-1}$ -Abschnitte auf.

flächenzustand deutet sich daher eine 120° Periodizität und damit eine dreizählige Symmetrie an. Aus der Auftragung können darüber hinaus zwei-, vier- und höherzählige Symmetrien ausgeschlossen werden.

Im untersuchten Anregungsprozess von Sb_2Te_3 mit p-polarisierten Laserimpulsen besitzt einzig die Oberfläche und die aus dieser abgeleiteten Größen eine dreizählige Symmetrie. Auch die Bandstruktur des topologischen Oberflächenzustands besitzt daher eine dreizählige Symmetrie mit den Hochsymmetriepunkten $\bar{\Gamma}$, \bar{K} , \bar{M} und \bar{M}' . Die beobachtete Asymmetrie zeigt gegenüber den Hochsymmetrierichtungen im Kristall eine Phasenverschiebung, im Polarplot sind die Bereiche hoher Intensität nicht spiegelsymmetrisch um $\bar{M}-\bar{M}'$ verteilt, wie aus der Spiegelsymmetrie des Kristalls zu erwarten wäre.

Zur Quantifizierung der Asymmetrie entlang verschiedener Kristallrichtungen und zur Bestimmung der beobachteten Phasenverschiebung wurden die der Abbildung 5.7 zugrundeliegenden Messungen der Elektronendynamik mit dem Ratengleichungsmodell 5.1 analog zu Abbildung 5.4 ausgewertet. Aus dem Verhältnis der ermittelten Parameter a und b lässt sich die maximale Asymmetrie der direkten optischen Anregung im Dirac-Kegel ermitteln. In Abbildung 5.8 sind die auf diese Weise aus den Fits ermittelten Asymmetrien als Funktion des Probenazimut θ aufgetragen. Die einzelnen

Datenpunkte ergeben sich aus dem Durchschnitt aller für einen Winkel und an einer Präparation durchgeführten Messungen. Der eingezeichnete Fehler des Azimuts beträgt 5° und setzt sich aus der Unsicherheit der Bestimmung der Kristallorientierung und dem Winkelfehler aufgrund der Unsicherheit in der Positionierung in z-Richtung vor dem Detektor zusammen. Der Fehler der Asymmetrie setzt sich aus den Unterschieden zwischen verschiedenen Messungen in einer Kristallorientierung und aus der Unsicherheit der Einzelmessungen zusammen und beträgt 0,1.

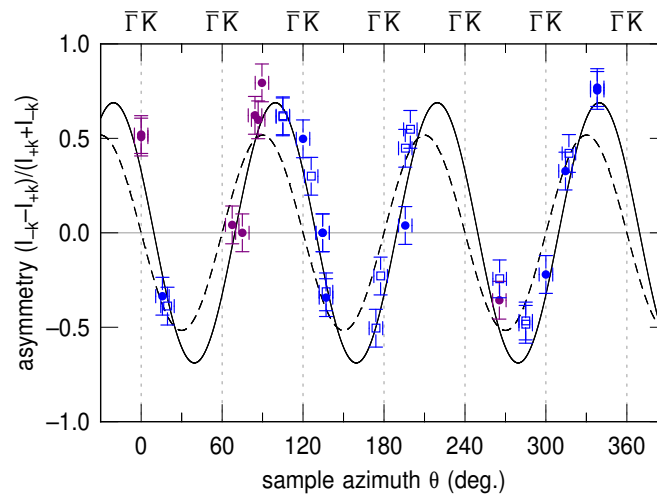


Abb. 5.8: Die maximale Asymmetrie der Intensitäten der direkten optischen Anregung für entgegengesetzte Parallelimpulse als Funktion des Probenazimuts θ mit unterschiedlichen Farben und Symbolen für verschiedene Messserien und Einfallswinkel. Die durchgezogene Linie zeigt den besten Fit an die Daten, die gestrichelte Linie zeigt den Fit des aus Symmetriebetrachtungen motivierten Verlaufs der Asymmetrie.

Die Ergebnisse unterschiedlicher Messserien sind mit unterschiedlichen Farben (lila / blau) gekennzeichnet. Die Experimente wurden sowohl unter 45° Einfallswinkel (geschlossene Kreise) als auch unter 78° (offene Vierecke) durchgeführt. Die beobachtete Asymmetrie ist unabhängig vom genutzten Einfallswinkel, die Anregung erfolgt jedoch effektiver für 78° . Dies zeigt, dass für die Anregung in den topologischen Oberflächenzustand, ähnlich wie auch für Bildpotentialzustände auf Metallen [171], die elektrischen Feldkomponenten senkrecht zur Oberfläche entscheidend sind.

Die beobachtete Asymmetrie zeigt für feste Werte des Azimuts nur geringe Varianz bei Messungen mit verschiedenen Einfallswinkeln (siehe $\theta = 137^\circ$ und 265°) oder zwischen unterschiedlichen Präparationen (siehe $\theta = 0^\circ$, 285° und 354°). Wie bereits in Abbildung 5.7 angedeutet und aus der Kristallsymmetrie motiviert, zeigt sich nach der Auswertung der Elektronendynamik in Abbildung 5.8 ebenfalls eine Dreizähligkeit der Asymmetrie. Zur Überprüfung dieser Hypothese und für die Extraktion der

beobachteten Phase wird an die Daten die Funktion

$$A(\theta) = C \cdot \sin(3 \cdot (\theta - \phi)) \quad (5.2)$$

angepasst. Die Anpassung des Modells mit freien Parametern ergibt $C = -0.69$ und $\phi = 9,5^\circ$. In Abbildung 5.8 ist das Modell für diese Werte als durchgezogene schwarze Linie eingezeichnet. Der Vergleich zwischen Daten und Fit zeigt eine hervorragende Übereinstimmung über den gesamten Winkelbereich. Es zeigen sich insbesondere keine systematischen Abweichungen, die eine zusätzlich winkelabhängige Komponente im Modell motivieren würden.

Eine Betrachtung des Modells 5.2 im Hinblick auf die Kristallsymmetrie verlangt aufgrund der Spiegelebene entlang $\overline{\text{M}}\text{-}\overline{\Gamma}\text{-}\overline{\text{M}}'$ einen Nulldurchgang der Asymmetrie bei Detektion entlang $\overline{\Gamma}\text{-}\overline{\text{K}}$ und damit eine Phase $\phi = 0^\circ$. Eine Anpassung des Modells für diese feste Phase liefert ein Optimum für den Parameter $C = -0,52$. Für den Vergleich ist das Modell mit diesem Wert als gestrichelte Linie in Abbildung 5.8 eingezeichnet. Es zeigen sich signifikante Abweichungen zu den experimentell bestimmten Werten über den gesamten Winkelbereich. Aufgrund der festen Phase $\phi = 0^\circ$ können insbesondere die experimentell beobachteten Nulldurchgänge der Asymmetrie bei $\theta = 75^\circ, 135^\circ$ und 195° nicht wiedergegeben werden und die Asymmetrie wird über große Winkelbereiche signifikant unterschätzt. Zusammengefasst kann das Modell die experimentellen Daten nur mit einer Phase $\phi \neq 0^\circ$ beschreiben.

Aus der Anpassung des Modells und der Extraktion der Phase $\phi = 9,5^\circ$ lassen sich Schlussfolgerungen für den Anregungsmechanismus der asymmetrischen Besetzung im Dirac-Kegel ziehen. Die beobachtete Dreizähligkeit scheint auf einen signifikanten Einfluss der Bandstruktur auf die Stärke des optischen Übergangs hinzudeuten. In Verbindung mit einem zusätzlichen externen Symmetriebruch, der die Spiegelsymmetrie des Kristalls im Experiment aufhebt, kann mit MIR-Impulsen eine Asymmetrie erzeugt werden. Der Symmetriebruch scheint entweder von der experimentellen Geometrie oder einer präparationsunabhängigen Veränderung der Probe hervorgerufen zu werden. Die hohe Reproduzierbarkeit der Asymmetrie und die azimutale Abhängigkeit schließen einen Symmetriebruch durch Stufen an der Oberfläche nahezu aus.

Die Kontrolle der Asymmetrie ist durch Wahl der Kristallorientierung in Bezug auf Einfall- und Detektionsebene gut möglich, aber vergleichsweise aufwendig. Für eine technische Anwendung erscheint diese Art der Kontrolle eher ungeeignet, da sich ohne Manipulation der Probengeometrie die Asymmetrie nicht beliebig Umschalten oder Ausschalten lässt.

5.3 Polarisationsabhängigkeit der Anregung im Dirac-Kegel

In Kapitel 5.2 wurde gezeigt, dass die mit MIR-Impulsen erzeugte Asymmetrie der Besetzung des Dirac-Kegels durch eine Änderung der Kristallorientierung bezüglich der Einfallsebene in Amplitude und Richtung beeinflusst werden kann. Diese Methode scheint jedoch nicht für ein unkompliziertes Um- und Abschalten der Asymmetrie geeignet zu sein, da eine physische Interaktion mit der Probe oder die Verwendung verschiedener Strahlengänge unterschiedlicher Richtungen notwendig wäre. Das Ziel sollte es daher sein, eine rein optische Kontrolle über die Asymmetrie zu erlangen.

Unter diesem Gesichtspunkt wird in den folgenden Abschnitten die Abhängigkeit der Asymmetrie im topologischen Oberflächenzustand von Sb_2Te_3 von der Polarisation des Anregungsimpulses diskutiert. Hierfür wurden Experimente mit $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Wellenplatten durchgeführt, um eine kontinuierliche Variation der linearen und zirkularen Polarisation der MIR-Impulse zu erhalten. Die durchgeführten Experimente motivieren sich aus dem erwarteten linearen und zirkularen photogalvanischen Effekt im Dirac-Kegel [164] nach Anregung mit Wellenlängen im Bereich der Bandlücke. In Transportexperimenten an topologischen Isolatoren wurde nach Anregung mit 800 nm Impulsen ein Photostrom aufgrund des linearen und zirkularen photogalvanischen Effekts beobachtet [167–170], die Zuordnung zum topologischen Oberflächenzustand erfolgte jedoch nur indirekt. Die Nutzung von zeit- und winkelaufgelöster Photoemission in den hier präsentierten Ergebnissen stellt einen deutlichen Vorteil gegenüber diesen Untersuchungen dar, da nur auf diese Weise der Ursprung einer gemessenen Asymmetrie oder eines Photostroms eindeutig dem Oberflächenzustand zugeordnet werden kann.

5.3.1 Kontrolle der Asymmetrie mit zirkularer Polarisation

Die Anregung des topologischen Oberflächenzustands in Sb_2Te_3 mit p-polarisierten MIR-Impulsen erzeugt für einen Probenazimut von $\theta = 135^\circ$ wie in Abbildung 5.9 (b) eine nahezu vollständig symmetrische Überhöhung der Besetzung bei $E - E_D = 150 \text{ meV}$. Ein Vergleich der Elektronendynamik für $\pm k_{\parallel}$ im Bereich der direkten optischen Anregung zeigt, dass die bei einer Verzögerung von $\Delta t = 180 \text{ fs}$ erkennbare schwache Asymmetrie der Intensität eine vernachlässigbar kleine Asymmetrie der Besetzung darstellt. Eine durch den linearen oder zirkularen Dichroismus hervorgerufenen Asymmetrie wird daher nicht wie in [23] durch eine polarisationsunabhängige Komponente dominiert.

Eine Rotation der im MIR-Strahlengang direkt vor dem UHV-Fenster positionierten $\lambda/4$ -Wellenplatte führt zu einer zyklischen Veränderung der Intensität des gesamten Dirac-Kegels und zu einer ausgeprägten Asymmetrie in der direkten optischen Anregung. Die Unterabbildungen 5.9 (a) und (c) zeigen Photoemissionsspektren zu

Winkeln α repräsentativ für die maximal beobachtete Asymmetrie im Oberflächenzustand. Während die Veränderung der Gesamtintensität nur im Vergleich zwischen (b) $\alpha = 90^\circ$ und (c) $\alpha = 150^\circ$ deutlich hervortritt, ist die Asymmetrie der direkten optischen Anregung sowohl für näherungsweise σ^+ -polarisierte ((a), $\alpha = 30^\circ$), als auch für annähernd σ^- -polarisierte Anregungsimpulse ((c), $\alpha = 150^\circ$) direkt in den Photoemissionsspektren erkennbar. Die mit entgegengesetzter Helizität elliptisch polarisierten Laserimpulse erzeugen entgegengesetzt ausgerichtete Asymmetrien der direkten optischen Anregung. Die Untersuchung der Elektronendynamik zeigt, dass es sich bei der beobachteten Intensitätsasymmetrie auch um eine Asymmetrie der Besetzung handelt. Die in Kapitel 5.1 diskutierte elastische Streuung aus Zuständen hoher Besetzung in Zustände niedrigerer Besetzung und der anschließende gleichmäßige Zerfall werden sowohl für $\alpha = 30^\circ$ als auch für $\alpha = 150^\circ$ beobachtet.

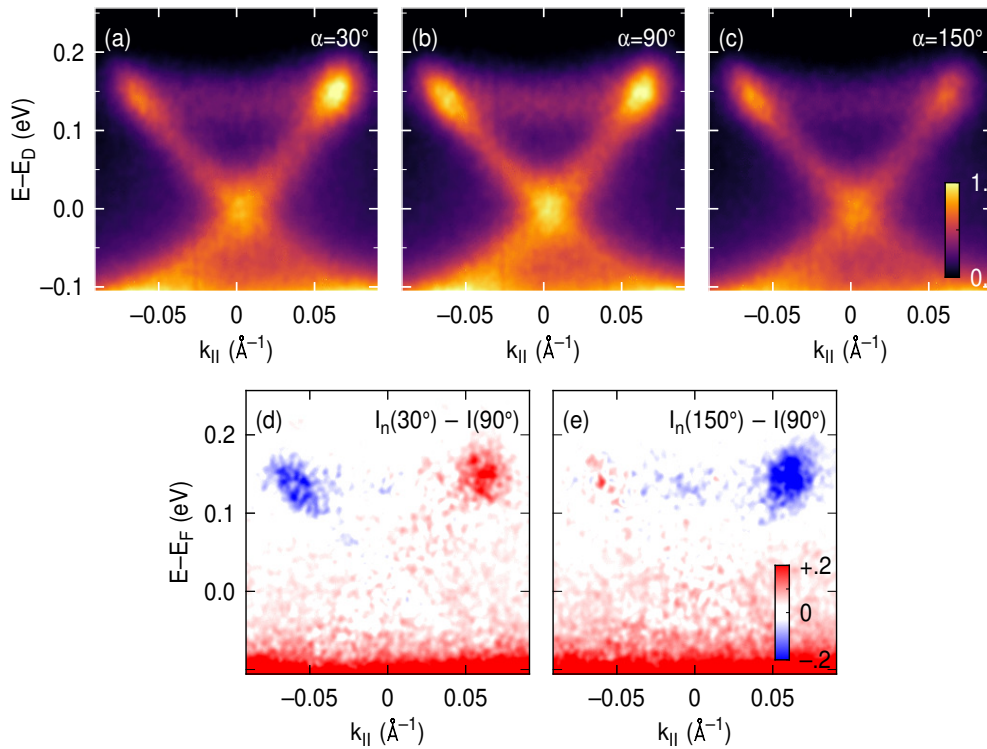


Abb. 5.9: (a-c) Photoemissionsspektren des Oberflächenzustands in Sb_2Te_3 für eine Verzögerung von 180 fs zwischen MIR- und UV-Impuls. Die Spektren für $\alpha = 30^\circ$ (a) und 150° zeigen die Extrema der Asymmetrie, erzeugt mit elliptisch polarisierten Laserimpulsen. Bei Anregung mit p-polarisierten Impulsen ((b), $\alpha = 90^\circ$) ist die Besetzung symmetrisch. (d,e) Differenzbilder der normierten Intensität zwischen elliptischer und p-polarisierter Anregung.

In Abbildung 5.9 (d,e) ist die relative Änderung der Besetzung im topologischen Oberflächenzustand aufgetragen. Diese wird aus der Differenz der Photoemissionsintensitäten an unterschiedlichen Winkeln α nach Normierung auf die Intensität am Dirac-Punkt erstellt. Für $\alpha = 30^\circ$ ist die Besetzung in dieser normierten Darstellung

für $\pm k_{||}$ in der Größenordnung um $\pm 20\%$ moduliert. Auf einer absoluten Skala verbleibt die Gesamtintensität für $+k_{||}$ nahezu konstant und die Asymmetrie wird fast vollständig durch die starke Reduktion in $-k_{||}$ -Richtung verursacht. Für annähernd σ^- -polarisierte Anregung bei $\alpha = 150^\circ$ ist Besetzung in beiden Parallelimpulsrichtungen deutlich reduziert. Die Asymmetrie wird hier durch die ausgeprägtere Reduktion in $+k_{||}$ verursacht.

Die kontinuierliche Winkelabhängigkeit der Besetzung im Dirac-Kegel ist in Abbildung 5.10 gezeigt. Die Intensität wird, wie in Teilabbildung (a) skizziert, in verschiedenen Regionen entlang des Dirac-Kegels (I, II und IV) und im Leitungsband (III) als Funktion des Winkels α der $\lambda/4$ -Wellenplatte ausgewertet. Die Region I ist um die überhöhte direkte optische Anregung um $E - E_D = 150$ meV zentriert, Region II liegt auf dem Dirac-Kegel bei $E - E_D = 75$ meV und Region III ist im Leitungsbandminimum platziert. Die Intensität im Bereich des unbesetzten Valenzbandmaximums und des Oberflächenzustands unterhalb des Dirac-Punktes wird in Region IV betrachtet. Die Teilabbildungen (b-e) zeigen die Intensität für negative (blaue Punkte) und positive (rote Punkte) Parallelimpulse als Funktion von α . Die Besetzung in allen Regionen ist von einer starken Modulation geprägt, in Region I ist deutlich die Inversion der Besetzung in Abhängigkeit der Polarisation zu erkennen.

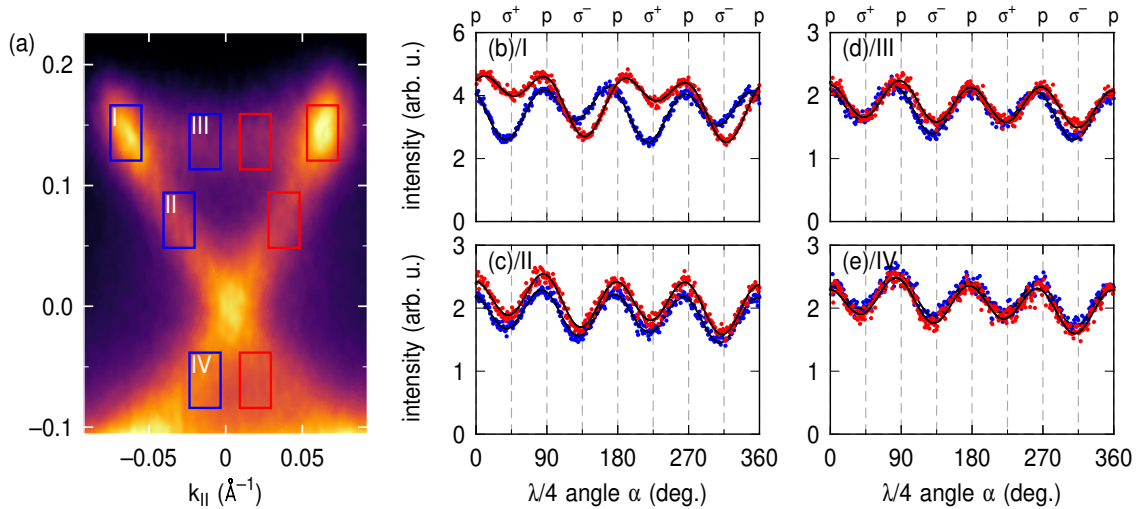


Abb. 5.10: (a) Photoemissionsspektrum von Sb_2Te_3 für eine Verzögerung von 180 fs zwischen den p-polarisierten Anrege- und Abfrageimpulsen mit den symmetrisch um $\bar{\Gamma}$ angeordneten Regionen für die in (b-e) ausgewertete Winkelabhängigkeit. (b-e) Photoemissionsintensitäten $I_{\pm k_{||}}$ in verschiedenen Bereichen des Dirac-Kegels als Funktion des Winkels α der $\lambda/4$ -Wellenplatte für eine Verzögerung von 50 fs. Die Anpassung des Modells 5.3 ist als schwarze Linie über die Daten gelegt.

Die Intensität in den einzelnen Regionen kann mit einem einfachen Modell allgemein sowohl für die Verwendung von $\lambda/2$ - als auch $\lambda/4$ -Wellenplatten beschrieben werden:

$$I_{\pm k_{\parallel}}(\alpha) = A_{4\alpha} \cdot \sin(4 \cdot (\alpha + \phi_{\text{lin}})) + A_{2\alpha} \cdot \sin(2 \cdot (\alpha + \phi_{\text{circ}})) + B \quad (5.3)$$

Die Intensität $I_{\pm k_{\parallel}}(\alpha)$ in den Regionen setzt sich aus einer vierzähligen Komponente $A_{4\alpha}$, einer zweizähligen Komponente $A_{2\alpha}$ und einem polarisationsunabhängigen Beitrag B zusammen. Im Falle einer $\lambda/4$ -Platte ist das Modell aus der vierzähligen Abhängigkeit der linearen Polarisation und aus der zweizähligen Komponente der zirkularen Polarisation zusammengesetzt. Bei Verwendung einer $\lambda/2$ -Platte vereinfacht sich Gleichung 5.3 durch Wegfallen der $\sin(2\alpha)$ Abhängigkeit und es verbleibt neben dem konstanten Untergrund nur die vierzählige Winkelabhängigkeit der sich drehenden linearen Polarisation. Um Veränderungen der Laserleistung im Verlauf des Experimentes für die vorliegenden Daten abbilden zu können, ist der Untergrund im Modell um eine Komponente proportional zu α erweitert worden. In Abbildung 5.10 ist das an die jeweiligen Regionen angepasste Modell als schwarze Linie über die Daten gelegt. Für die vier untersuchten Regionen I-IV kann das Modell über den gesamten Winkelbereich die beobachtete Besetzung reproduzieren und es zeigen sich keine systematischen Abweichungen, die eine zusätzliche winkelabhängige Komponente motivieren.

Zur Bestimmung der durch den photogalvanischen Effekt erzeugten Asymmetrie wird die Differenz $\Delta I_{\text{circ}}(\alpha) = I_{-k} - I_{+k}$ zwischen Regionen entgegengesetzten Parallelimpulses gebildet. Für eine Verzögerung von 50 fs ist in Abbildung 5.11 ΔI_{circ} (grüne Punkte) der experimentellen Daten in Abbildung 5.10 als Funktion des Winkels α der $\lambda/4$ -Wellenplatte aufgetragen. Im Bereich der direkten optischen Anregung ((a), Region I) setzt sich die Asymmetrie aus einer stark winkelabhängigen und einer im Vergleich wenig intensiven winkelunabhängigen Komponente zusammen. Für $\alpha = 30^\circ$ und $\alpha = 150^\circ$ erreicht die Asymmetrie ihren Minimal- beziehungsweise Maximalwert. Die Laserimpulse sind für diese Winkel elliptisch polarisiert, die Asymmetrie kann daher nicht ausschließlich durch die zirkulare Polarisationskomponente hervorgerufen werden und es muss, wie auch in Transportexperimenten nach Anregung mit 800 nm Impulsen beobachtet [167, 169], von einer Überlagerung von zirkularem und linearem photogalvanischem Effekt ausgegangen werden. Für linear p-polarisierte Anregungsimpulse bei $\alpha = 90^\circ$ zeigt die winkelabhängige Komponente der Modulation einen Nulldurchgang. Die Stärke der Asymmetrie liegt bei ungefähr 15% der Gesamtintensität der zugehörigen Regionen. In den Regionen II und III (b,c) ist für eine Verzögerung von 50 fs eine schwach ausgeprägte Modulation der Asymmetrie auf einer Größenordnung kleiner 2% der Gesamtintensität messbar, in Region IV unterhalb des Dirac-Punktes ist die Asymmetrie vollständig winkelunabhängig. Der hohe Unterschied zwischen den Regionen I und II/III bezüglich der Intensität zeigt, dass die

durch eine direkte optische Kopplung hervorgerufene direkte optische Anregung in Region I die Ursache für die beobachtete polarisationsabhängige Asymmetrie ist.

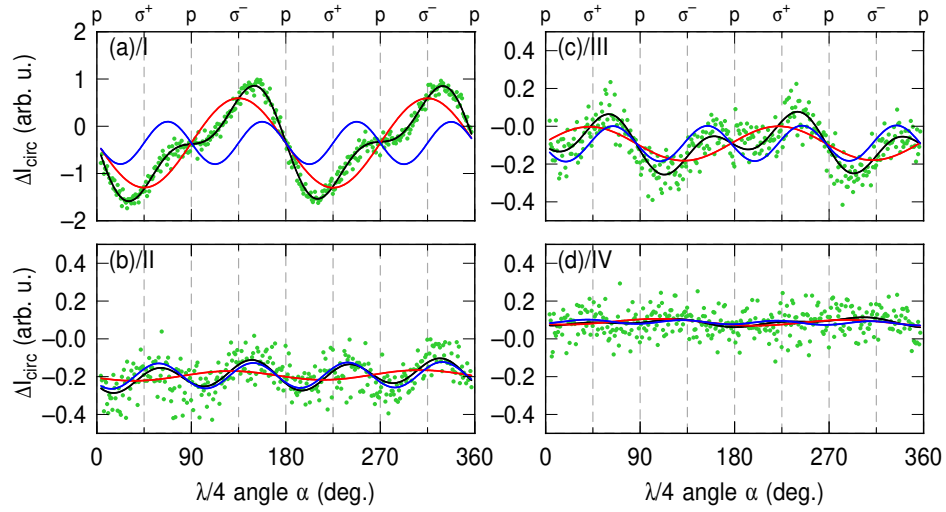


Abb. 5.11: (a-d) Die Differenz der Intensitäten $\Delta I_{\text{circ}} = I_{-k} - I_{+k}$ aus Abbildung 5.10 für eine Verzögerung von 50 fs als Funktion des Winkels α der $\lambda/4$ -Wellenplatte. Die jeweilige Anpassung des Modells 5.4 (schwarze Linie) an die Daten ist zusammen mit den einzelnen Komponenten für den linearen (blaue Linie) und zirkularen Dichroismus (rote Linie) eingezeichnet.

Die Bestimmung der einzelnen Beiträge zur Asymmetrie erfolgt durch Anpassung des Modells:

$$\begin{aligned} \Delta I_{\text{circ}}(\alpha) &= I_{-k} - I_{+k} \\ &= A_{4\alpha} \cdot \sin(4 \cdot (\alpha + \phi_{\text{circ}})) + A_{2\alpha} \cdot \sin(2 \cdot (\alpha + \phi_{\text{circ}})) + B \end{aligned} \quad (5.4)$$

Die Asymmetrie ΔI setzt sich aus einer vier- und einer zweizähligen Komponente mit einem zusätzlichen winkelunabhängigen Beitrag zusammen. Auf diese Weise können die von der zirkularen ($\propto \sin(2\alpha)$) und der linearen ($\propto \sin(4\alpha)$) Polarisation abhängigen Komponenten $A_{2\alpha}$ und $A_{4\alpha}$ direkt bestimmt werden. Die winkelunabhängige Komponente B entspricht dem konstanten Unterschied der Intensitäten und wird durch eine Komponente proportional zu α ergänzt, um Veränderungen in der Intensität der Laserimpulse abzubilden.

In Abbildung 5.11 sind für die untersuchten Regionen sowohl die Anpassung des Gesamtmodells 5.4 (schwarze Linie) als auch die beiden winkelabhängigen Komponenten über die Daten gelegt. Ein Vergleich zwischen Modell und experimentellen Daten zeigt eine hervorragende Übereinstimmung und bestätigt damit die in die Modellbildung eingeflossenen Überlegungen. Es zeigt sich insbesondere, dass für die Modellierung keine zusätzlichen winkelabhängigen Komponenten notwendig sind. So kann auf die in [167] erstmalig verwendete Komponente proportional $\cos(4\alpha)$ vollständig verzichtet werden. Diese, dem Photon Drag Effekt in Volumenzuständen zuge-

schriebene Komponente, ist auch für die Beschreibung der Asymmetrie im Volumen-Leitungsband nicht notwendig. Die Übereinstimmung zwischen Modell und experimentellen Daten zeigt, dass es sich bei der Ursache der beobachteten Asymmetrie um die vermutete Überlagerung von zirkularem und linearem photogalvanischem Effekt handelt.

Eine Betrachtung der einzelnen winkelabhängigen Komponenten zeigt, dass für eine Verzögerung von 50 fs im Bereich der direkten optischen Anregung der in der Spintextur begründete zirkulare photogalvanische Effekt ungefähr doppelt so intensiv wie der lineare ist. In den Regionen außerhalb der direkten optischen Anregung ist der lineare photogalvanische Effekt ähnlich stark (Region III) oder sogar stärker (Region II) als der zirkulare. In beiden Regionen zeigt sich außerdem eine Phasenverschiebung der Asymmetrie. Die zirkulare Komponente im Leitungsband (Region 3) zeigt zusätzlich ein im Vergleich zu den Regionen I und II im Oberflächenzustand gedrehtes Vorzeichen.

Die Verwendung zeitaufgelöster Photoemission ermöglicht die Untersuchung des zirkularen Dichroismus als Funktion der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. In Abbildung 5.12 ist beispielhaft die Asymmetrie ΔI_{circ} der direkten optischen Anregung (Region I) und die Anpassung des Modells 5.4 für Verzögerungen zwischen 50 fs und 550 fs aufgetragen. Die Amplitude der Modulation der Asymmetrie nimmt aufgrund der elastischen und inelastischen Streuung aus der Region in andere Bereiche des Dirac-Kegels und des Leitungsbands deutlich ab. Die Phasenlage der Asymmetrie ist für eine Verzögerung bis einschließlich 300 fs konstant, das Verhältnis von zirkularem zu linearem Dichroismus gleicht sich jedoch an.

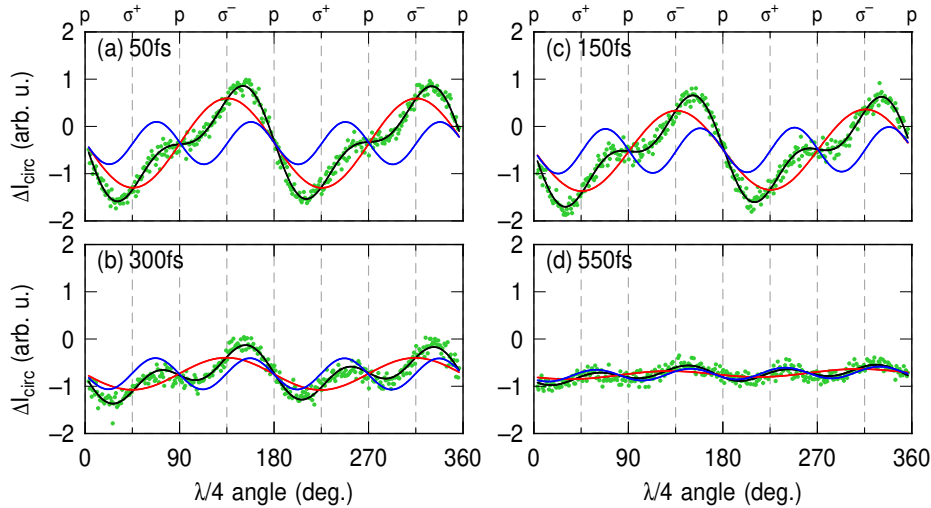


Abb. 5.12: (a-d) Die Asymmetrie der direkten Anregung (Region I in Abbildung 5.15 (a)) als Funktion des Winkels α der $\lambda/4$ -Wellenplatte für verschiedene Verzögerungen zwischen MIR- und UV-Impuls. Aus dem Vergleich der Intensitäten ist eine starke Abnahme der polarisationsabhängigen Asymmetrie für höhere Verzögerungen gut zu erkennen.

Die in Abbildung 5.12 durchgeführte Analyse in Region I kann auf die Regionen II-IV erweitert werden. Abbildung 5.13 fasst die Ergebnisse der Auswertung zusammen und trägt dazu mit $A_{4\alpha/2\alpha}/(I_{-k} + I_{+k})$ die Stärke des zirkularen oder linearen photogalvanischen Effekts in Relation zur Gesamtintensität in den Regionen auf. Da die winkelabhängige Modulation in Region IV vernachlässigbar schwach ausgeprägt ist, beschränkt sich die Abbildung auf die Regionen oberhalb des Dirac-Punktes. Trotz der wenigen Messpunkte ist eine qualitative und eingeschränkt auch quantitative Analyse der Dynamik möglich.

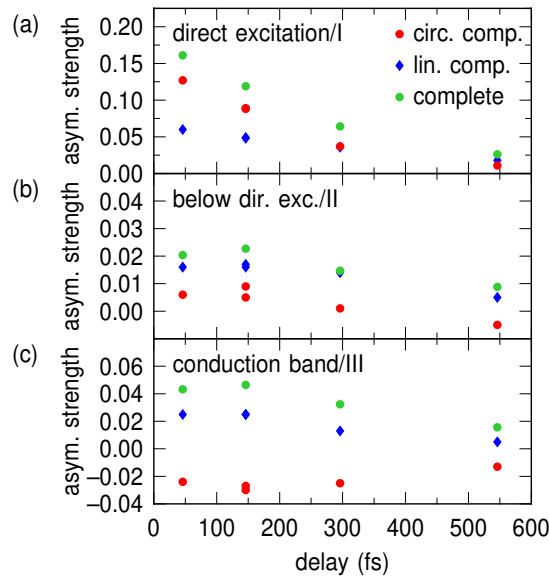


Abb. 5.13: (a-c) Stärke der Asymmetrie (grüne Punkte) und ihrer zirkularen (rote Punkte) und linearen (blaue Vierecke) Komponente als Funktion der Verzögerung zwischen UV- und MIR-Impuls in den Regionen I bis III. Aufgetragen ist das Verhältnis zwischen den Komponenten $A_{4\alpha}$, $A_{2\alpha}$ des photogalvanischen Effekts und der Gesamtintensität $I_{-k} + I_{+k}$ in den zugehörigen Integralregionen.

In Teilabbildung (a) ist der zeitliche Verlauf der linearen (blaue Vierecke) und zirkularen (rote Punkte) Komponente der Asymmetrie für vier verschiedene Verzögerungen aufgetragen. Beide Komponenten besitzen in den vorliegenden Daten ein Maximum bei 50 fs Verzögerung und nehmen anschließend monoton ab. Eine Anpassung eines exponentiellen Zerfalls an die Daten erlaubt die Extraktion von Zerfallskonstanten von $\approx 250 \pm 100$ fs für die zirkuläre und $\approx 750 \pm 150$ fs für die lineare Komponente. Beide Zerfallszeiten liegen deutlich unterhalb der in Kapitel 5.1 bestimmten elastischen Lebensdauer $\tau_e = 2,5$ ps. Dies spricht für unterschiedliche Zerfallsmechanismen der einzelnen Beiträge zur Asymmetrie im Oberflächenzustand. Spinaufgelöste Photoemissionsexperimente an topologischen Isolatoren [44, 46, 49, 197] konnten die starke Abhängigkeit der Spinstruktur von der Polarisation der Anregungsimpulse bereits zeigen. In Sb_2Te_3 wurde des Weiteren ein im Vergleich zur Gesamtpopulation

signifikant beschleunigter Zerfall der Spinpopulation beobachtet [70]. Die aufgrund der Anregung mit zirkular polarisierten MIR-Impulsen vorhandene transiente Spinpolarisation im Oberflächenzustand vermag daher unter Umständen über neu zur Verfügung gestellte Streukanäle die Lebensdauer der Asymmetrie wie beobachtet abzusinken. Des weiteren ist eine Veränderung der effektiven Lebensdauer aufgrund der Betrachtung der Asymmetrie in einer anderen Kristallrichtung, hier zwischen $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ und $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{M}}$ bei $\theta = 135^\circ$ anstelle von $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{\text{K}}$ bei $\theta = 0^\circ$ mit $\tau_e = 2,5 \text{ ps}$ in Kapitel 5.1 möglich.

In den Regionen II und III ist die Dynamik der zirkularen und linearen Komponenten im Vergleich zu Region I signifikant verzögert und beide erreichen ihr Maximum um 150 fs und nehmen anschließend monoton ab. Dieses Verhalten kann mit der in Kapitel 5.1 beobachteten indirekten Befüllung aus dem Bereich der direkten optischen Anregung (Region I) in die Bereiche des Dirac-Kegels nahe des Dirac-Punktes (Region II) und in das Leitungsband (Region III) erklärt werden. Die in Region I durch den linearen und zirkularen photogalvanischen Effekt erzeugte Asymmetrie der Besetzung wird dabei durch Streuprozesse transferiert und erscheint damit erst verzögert in diesen Bereichen der Bandstruktur. Neben der beobachteten Verzögerung stellt die Phasenlage der dichroitischen Komponenten ein weiteres Indiz für diesen Prozess dar. Für eine Verzögerung von 50 fs ist die beobachtete Asymmetrie in Region II und III um bis zu 8° in Bezug auf Region I verschoben. Dieser Phasenversatz reduziert sich für Verzögerungen ab 150 fs auf weniger als 2° , die asymmetrische Besetzung in Region II und III folgt daher direkt der Besetzung in Region I.

Zusammenfassend konnte in diesem Abschnitt gezeigt werden, dass die direkte optische Anregung des topologischen Oberflächenzustands in Sb_2Te_3 mit MIR-Impulsen ($\hbar\omega = 0,35 \text{ eV}$) durch den photogalvanischen Effekt die rein optische Erzeugung und Kontrolle einer asymmetrischen Besetzung im Dirac-Kegel ermöglicht. Die polarisationsabhängigen Messungen konnten eine Überlagerung des linearen und des zirkularen photogalvanischen Effektes nachweisen. Die beobachtete Asymmetrie zeigt für die lineare und zirkulare Komponente eine unterschiedlich schnelle Dynamik, die im Vergleich zur durch die Kristallorientierung erzeugten Asymmetrie in Kapitel 5.1 deutlich beschleunigt ist. Die beobachtete Asymmetrie erreicht bis zu 16% der Gesamtintensität für eine Verzögerung von 50 fs. Zur Bestimmung der Stärke der Asymmetrie der Elektronenspins sind jedoch spinaufgelöste Photoemissionsexperimente notwendig. Ein Vergleich zu Transportexperimenten nach Anregung mit 800 nm Impulsen zeigt die Vorteile sowohl der Bestimmung der asymmetrischen Besetzung mit Hilfe der Photoemission als auch der Anregung mit $\hbar\omega = 0,35 \text{ eV}$ Laserimpulsen. Durch die niedrige Photonenenergie und den direkten optischen Übergang ist eine spezifische Anregung des Oberflächenzustands möglich. Die Verwendung einer energie- und impuls aufgelösten Messmethode ermöglicht es, den linearen und zirkularen photogalvanischen Effekt selektiv im Dirac-Kegel zu untersuchen. In Kombination kommt es damit nicht zu der in Transportmessungen beobachteten, unerwünschten Überlagerung von Signalen aus Volumenzuständen und dem topologischen Oberflächenzustand.

5.3.2 Kontrolle der Asymmetrie mit linearer Polarisation

Die Untersuchungen im vorherigen Kapitel 5.3.1 zeigen eine Modulation und Inversion der Asymmetrie im Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 in Abhängigkeit der Polarisation der Anregungsimpulse. Die Asymmetrie kann dabei einer Überlagerung des zirkularen und des linearen photogalvanischen Effektes zugeordnet werden. Der vergleichsweise starke Einfluss der linear polarisierten Komponente auf die Asymmetrie im Dirac-Kegel motiviert die in diesem Kapitel vorgestellten Untersuchungen zum linearen photogalvanischen Effekt im topologischen Oberflächenzustand von Sb_2Te_3 . Hierzu wurde die lineare Polarisation der MIR-Impulse ($\hbar\omega = 0,35 \text{ eV}$) mit Hilfe einer $\lambda/2$ -Wellenplatte gedreht und anschließend die Besetzung im Dirac-Kegel als Funktion des Drehwinkels α dieser Wellenplatte untersucht.

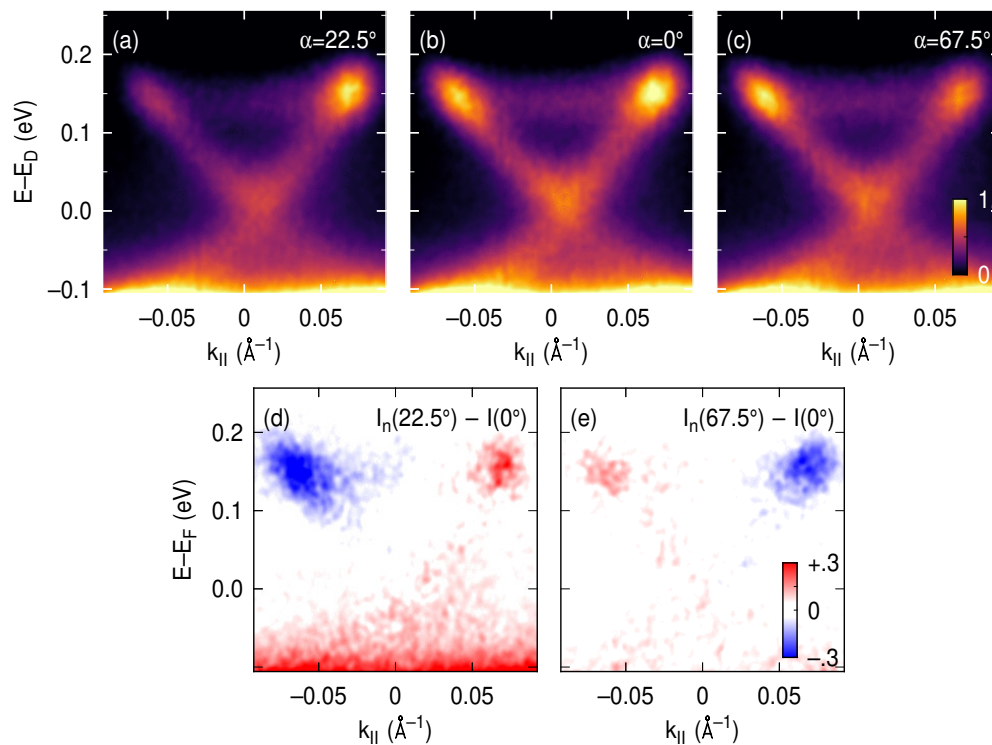


Abb. 5.14: (a-c) Photoemissionsintensität im transient besetzten Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 für eine Verzögerung von 165 fs zwischen UV- und MIR-Impuls, α entspricht dem Winkel der $\lambda/2$ -Platte. Für p-polarisierte Impulse ((b), $\alpha = 0^\circ$) ist die direkte Anregung in $\pm k_{||}$ -Richtung zu beobachten. Für um $\pm 45^\circ$ verkippte Polarisation ((a,c) $\alpha = 22,5^\circ$ und $67,5^\circ$) ist die Intensität in der direkten optischen Anregung in einer Richtung abgeschwächt. (d,e) Differenz der normierten Intensitäten zwischen der um $\pm 45^\circ$ gedrehten und der p-polarisierten Anregung.

Nach Anregung mit p-polarisierten Laserimpulsen für $\alpha = 0^\circ$ zeigt sich erneut die nahezu vollständig symmetrische Intensität und die beobachtete annähernd symmetrische Besetzung im Bereich der direkten optischen Anregung. Ein Drehen der

$\lambda/2$ -Platte führt, wie nach dem Drehen der $\lambda/4$ -Platte in Abschnitt 5.3.1, zu einer zyklischen Variation der Gesamtintensität und einer ausgeprägten Veränderung des Intensitätsverhältnisses zwischen $\pm k_{||}$.

Die Polarisationsabhängigkeit der Anregung im Oberflächenzustand ist von einer signifikanten Veränderung der Intensität im Bereich direkten optischen Anregung sowohl für um 45° gedrehte Polarisation ((a), $\alpha = 22,5^\circ$) als auch für um -45° gedrehte Polarisation ((c), $\alpha = 67,5^\circ$) dominiert. Die um 90° zueinander gedrehten, weiterhin linear polarisierten Laserimpulse erzeugen entgegengesetzt ausgerichtete Asymmetrien der direkten optischen Anregung. Die Gesamtintensität im Dirac-Kegel verändert sich im Vergleich dazu nur schwach und in Abbildung 5.14 ist der Unterschied nur zwischen (a) $\alpha = 22,5^\circ$ und (b) $\alpha = 0^\circ$ deutlich in den Photoemissionsspektren erkennbar.

In Abbildung 5.14 (d,e) ist die relative Änderung der Besetzung im topologischen Oberflächenzustand aufgetragen. Diese wird aus der Differenz der Photoemissionsintensitäten nach Normierung auf die Intensität am Dirac-Punkt erstellt. In der normierten Ansicht ist deutlich zu erkennen, dass die Änderung der Asymmetrie hauptsächlich durch eine ausgeprägte Verringerung der Intensität in einer Parallelimpulsrichtung erzeugt wird. Die Erhöhung der Besetzung in entgegengesetzter Richtung ist im Vergleich dazu schwächer ausgeprägt. Auf absoluter Skala wird, wie bereits nach Anregung mit zirkular polarisierten Laserimpulsen, die beobachtete Asymmetrie vordergründig durch eine Reduktion der Besetzung in einer Parallelimpulsrichtung hervorgerufen.

Die kontinuierliche Winkelabhängigkeit der Besetzung im Dirac-Kegel ist in Abbildung 5.15 dargestellt. Die Intensität im Dirac-Kegel wird in den vier Regionen (siehe Abbildung 5.15 (a)) als Funktion des Winkels α der $\lambda/2$ -Platte ausgewertet. Die Region I ist erneut um die überhöhte direkte optische Anregung um $E - E_D = 150$ meV zentriert, Region II liegt auf dem Dirac-Kegel bei $E - E_D = 75$ meV und Region III ist im Leitungsbandminimum platziert. Die Teilabbildungen (b-e) zeigen die Intensität für negative (blaue Punkte) und positive (rote Punkte) Parallelimpulse als Funktion von α . Die Besetzung ist gleichmäßig in allen Regionen von einer starken, vierzähligen Modulation geprägt.

Im Bereich der direkten optischen Anregung ((a), I) geht die Besetzung für bestimmte Winkel α auf die Hälfte der Besetzung für p-polarisierte Anregung zurück. Ein Vergleich der im Parallelimpuls entgegengesetzt liegenden Regionen offenbart, analog zur Beobachtung bei Verwendung einer $\lambda/4$ -Platte, eine Phasenverschiebung der Besetzung für $+k_{||}$ und $-k_{||}$. Die maximale Besetzung wird für $+k_{||}$ wenige Grad nach p-Polarisation, für $-k_{||}$ wenige Grad vor selbiger erreicht. Dieser Phasenunterschied führt zu einer Inversion der Asymmetrie im Bereich der direkten optischen Anregung.

Die Intensität in den Regionen II-IV außerhalb der direkten optischen Anregung beträgt für eine Verzögerung von 165 fs bis zu 55% der Intensität in Region I. Da die

Besetzung in diesen Zuständen durch elastische und inelastische Streuung aus den Bereichen direkter optischer Anregung (siehe Abbildung 5.2) entsteht, erscheint die durch den linearen photogalvanischen Effekt in Region I verursachte Asymmetrie in den Regionen II und III nur deutlich reduziert. Der in Region I beobachtete Phasenversatz zwischen $\pm k_{||}$ ist in den benachbarten Regionen II und III entsprechend ebenfalls reduziert. Die Modulation aufgrund der Drehung der Polarisation liegt weiterhin bei ungefähr 50% der Intensität für p-Polarisation. Die Asymmetrie, entsprechend dem Unterschied zwischen den gegenüberliegenden Regionen, ist im Vergleich zu Region I signifikant reduziert. In Region IV ist aufgrund der hohen Zahl von Streuereignissen keine Phasenverschiebung zwischen den gegenüberliegenden Regionen erkennbar.

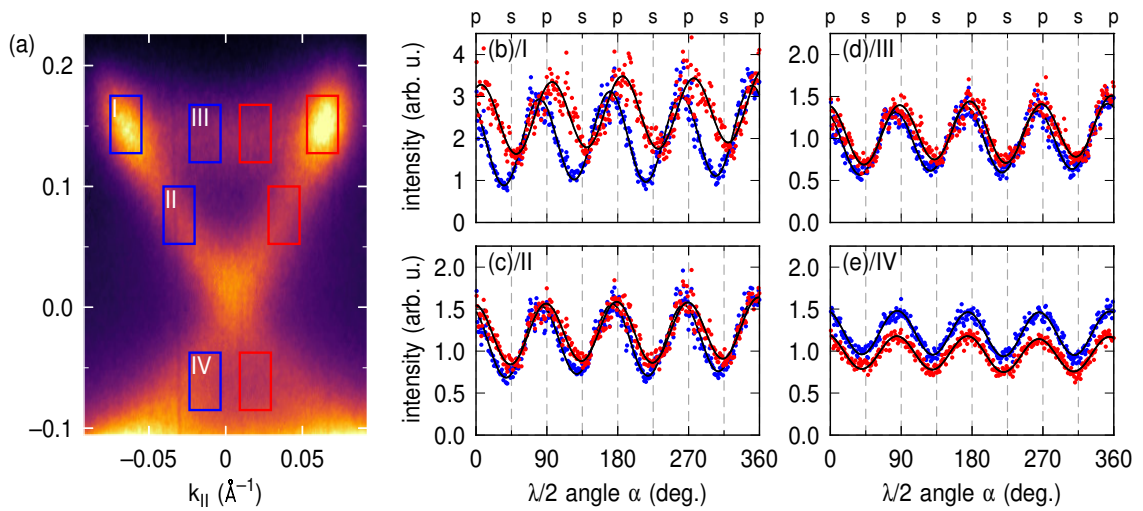


Abb. 5.15: (a) Photoemissionsspektrum von Sb_2Te_3 für eine Verzögerung von 165 fs zwischen p-polarisiertem Anrege- und Abfrageimpuls mit den symmetrisch um $\bar{\Gamma}$ angeordneten Regionen für die in (b-e) ausgewertete Winkelabhängigkeit. (b-e) Intensität in positive (rote Punkte) und negative Richtung (blaue Punkte) des Parallelimpulses in verschiedenen Regionen (I-IV) im Oberflächenzustand und Leitungsband. Die Anpassung des Modells 5.3 ist als schwarze Linie auf die Daten gelegt.

Die Intensität in den einzelnen Regionen kann weiterhin mit dem im vorherigen Kapitel eingeführten Modell 5.3 beschrieben werden. Bei Verwendung einer $\lambda/2$ -Platte ist eine Vereinfachung des Modells durch die Entfernung der $\sin(2\alpha)$ -Komponente möglich. An die experimentellen Daten in Abbildung 5.15 (b-d) wurde das vollständige Modell 5.3 angepasst und als schwarze Linie über die experimentellen Daten gelegt. Das Modell kann die Intensitäten in allen untersuchten Regionen des Spektrums über den gesamten Winkelbereich in hoher Übereinstimmung wiedergeben. Die zweizählige Komponente ist mit $A_{2\alpha} < 2,5\% \cdot A_{4\alpha}$, wie für die Verwendung einer $\lambda/2$ -Platte erwartet, vernachlässigbar klein.

Die in entgegengesetzte Parallelimpulsrichtungen $\pm k_{||}$ ausgewertete Besetzung im Dirac-Kegel kann genutzt werden, um die Asymmetrie $\Delta I_{\text{lin}}(\alpha) = I_{-k} - I_{+k}$ im Dirac-

Kegel und Leitungsband zu bestimmen. In Abbildung 5.16 ist die Asymmetrie für die vier Regionen I-IV als Funktion von α aufgetragen. Die experimentellen Daten zeigen in allen vier untersuchten Bereichen eine stark ausgeprägte vierzählige Symmetrie. Die Asymmetrie ist in den Regionen II und III um einen Faktor drei kleiner als im Bereich der direkten optischen Anregung (Region I). Die Extrema der Asymmetrie liegen in Region I genau zwischen s- und p-Polarisation, entsprechend einer linear polarisierten Anregung mit um 45° verkippter Polarisationsachse. In den Bereichen II und III ist die Phasenlage trotz erfolgter Streuung nur minimal verschoben. Im Gegensatz hierzu ist im Bereich IV, unterhalb des Dirac-Punktes, die Asymmetrie im Vergleich zu Region I gerade maximal stark verschoben, die Extrema der Asymmetrie fallen mit s- und p-Polarisation zusammen. Die Intensitätsasymmetrie wechselt zusätzlich in den Regionen I bis III ihr Vorzeichen und es kommt zu einer Umkehr der Asymmetrie.

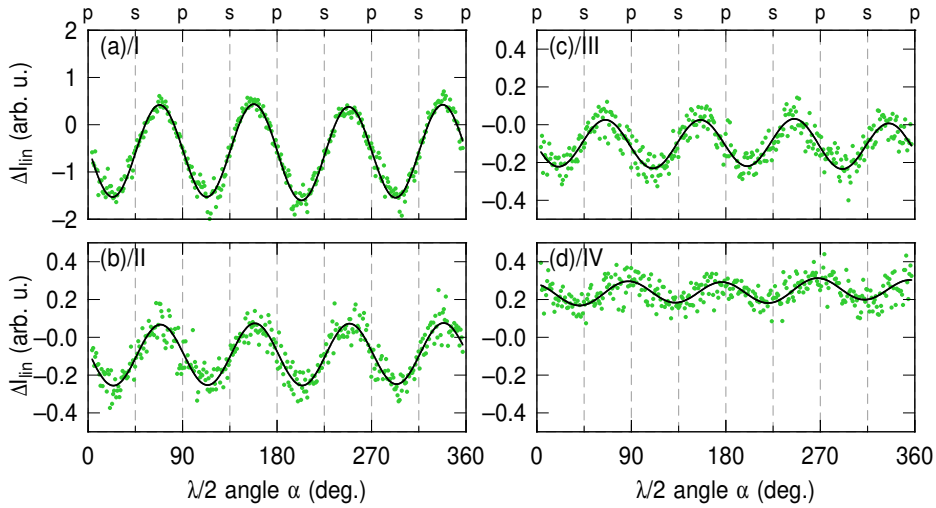


Abb. 5.16: (a-d) Die Differenz der Intensitäten $\Delta I_{\text{lin}} = I_{-k} - I_{+k}$ zwischen gegenüberliegenden Parallelimpulsen $\pm k_{\parallel}$ für eine Verzögerung von 165 fs in den in Abbildung 5.14 (a) gekennzeichneten Regionen I-IV als Funktion des Winkels α der $\lambda/2$ -Platte. Die schwarze Linie entspricht der Anpassung des Modells 5.5 an die jeweiligen Daten.

Zur Bestimmung der Stärke und genauen Phasenlage der Asymmetrie wird das Modell für den linearen photogalvanischen Effekt in Gleichung 5.5 an die Daten angepasst, die Ergebnisse der Anpassung sind in Abbildung 5.16 als schwarze Linien über die Daten gezeichnet.

$$\Delta I_{\text{lin}}(\alpha) = I_{-k} - I_{+k} = A_{4\alpha} \cdot \sin(4 \cdot (\alpha + \phi_{\text{lin}})) + B \quad (5.5)$$

Das gewählte Modell ist in der Lage, die experimentellen Daten in hoher Güte ohne systematische Abweichungen wiederzugeben. Die beobachtete Asymmetrie ist daher auf den linearen photogalvanischen Effekt im Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 zurückzuführen. In Tabelle 5.2 sind die ermittelten Zahlenwerte des linearen photogalvanischen Effekts in den Regionen I-IV und die Phasenlage relativ zu Region I zusammengefasst.

Region	I	II	III	IV
$I_{4\omega}/(I_{-k} - I_{+k})$	0,23	0,07	0,06	0,02
ϕ_{lin}	0,0°	-0,9°	2,6°	26,7°

Tab. 5.2: Stärke und Phasenlage des linearen photogalvanischen Effekts im Vergleich zur Gesamtintensität in den untersuchten Regionen I-IV für eine Verzögerung von 165 fs.

Die beobachtete Asymmetrie in der direkten optischen Anregung in Region I erreicht 23% der Gesamtintensität und ist in den Regionen II und III um einen Faktor drei schwächer ausgeprägt. Die ermittelte Phasenverschiebung zwischen Region I und II im Dirac-Kegel beträgt $-0,9^\circ$, im Rahmen der Messunsicherheit ist die Asymmetrie in Region II daher nicht signifikant verschoben. Die Asymmetrie innerhalb des Leitungsbands in Region III zeigt hingegen mit $2,6^\circ$ eine zwar kleine, aber deutliche Phasenverschiebung. Die verschwindend geringe Asymmetrie (0,2%) in Region IV unterhalb des Dirac-Punktes weist eine Phasenverschiebung um $26,7^\circ$ auf, die Extrema der Asymmetrie fallen mit s- und p-Polarisation zusammen. In Region IV ist daher keine Asymmetrie in Folge des linearen photogalvanischen Effekts feststellbar, die gemessene Modulation ist eine Folge des linearen Dichroismus.

In diesem Abschnitt konnte gezeigt werden, dass mit linear polarisiertem Licht eine Asymmetrie der Besetzung innerhalb des Dirac-Kegels erzeugt und durch Drehung der Polarisationsachse in Stärke und Richtung kontrolliert werden kann. Die Asymmetrie wird durch den linearen photogalvanischen Effekt verursacht und bestätigt damit die in Kapitel 5.3.1 beobachtete Überlagerung von linearem und zirkularem photogalvanischem Effekt. Nach Anregung mit linear polarisiertem Licht mit einer um 45° zur p-Polarisation verkippten Polarisationsachse beträgt die Asymmetrie im Bereich der direkten optischen Anregung 23% der Gesamtintensität für eine Verzögerung von 165 fs. Die Asymmetrie ist damit ungefähr doppelt so stark ausgeprägt wie die durch elliptisch polarisierte Anregung erzeugte maximale Asymmetrie von 12% bei einer vergleichbaren Verzögerung von 150 fs. Damit scheint die Verwendung von linear polarisiertem Licht und dem linearen photogalvanischen Effekt eine gleichwertige Alternative zur Verwendung von zirkular polarisierten Anregungsimpulsen für die Erzeugung von Photoströmen in topologischen Isolatoren darzustellen. Inwieweit auch der Grad der Spinpolarisation der Besetzung nach Anregung mit linear polarisiertem Licht vergleichbar mit dem Zustand nach Anregung mit zirkular polarisierten Impulsen ist, kann nur im Rahmen zusätzlicher spinaufgelöster Experimente geklärt werden.

5.4 Zusammenfassung und Diskussion: Optische Anregung von Photoströmen in Sb_2Te_3

Im zurückliegenden Kapitel konnte mittels zeit- und winkelaufgelöster 2PPE gezeigt werden, dass sich durch Anregung mit MIR-Impulsen eine im k -Raum asymmetrische Besetzung im Dirac-Kegel des topologischen Isolators Sb_2Te_3 erzeugen lässt. Die asymmetrische Besetzung kann durch Variation der Kristallorientierung bezüglich der Einfallsebene der p -polarisierten Impulse in Richtung und Stärke kontrolliert werden. Für eine spezifische Orientierung ist eine Kontrolle der Asymmetrie zusätzlich durch die Drehung der linearen Polarisation oder durch die Nutzung zirkularer Polarisation unterschiedlicher Helizität möglich. Die Erzeugung der asymmetrischen Besetzung konnte dem linearen und zirkularen photogalvanischen Effekt zugeordnet werden.

Somit wurde in dieser Arbeit durch die Erzeugung und Kontrolle einer asymmetrischen Besetzung die notwendige Voraussetzung für die Existenz eines Stroms geschaffen. Die im eindimensionalen Schnitt beobachtete Asymmetrie der Besetzung entspricht einem eindimensionalen Strom an der Oberfläche des topologischen Isolators. Aufgrund des verwendeten Elektronenanalysators ist es jedoch nicht möglich, die Elektronenverteilung im gesamten, zweidimensionalen k -Raum des Oberflächenzustands zu betrachten.

Es stellt sich somit direkt die Frage, ob aus der im hier vorliegenden Fall beobachteten Asymmetrie entlang eines eindimensionalen Schnittes durch den k -Raum auf die Existenz eines Photostroms im gesamten Dirac-Kegel geschlossen werden kann. Dies ist gleichbedeutend mit der Frage, ob die asymmetrische Besetzung eine ein- oder dreizählige Symmetrie im k -Raum besitzt. Handelt es sich um eine einzählige Symmetrie, dann liegt ein Photostrom vor. Ist die Symmetrie dreizählig, wie in Experimenten mit 800 nm Anregung in Bi_2Se_3 beobachtet [198], so verschwindet in Summe über alle Richtungen die Asymmetrie und es existiert kein Photostrom, obwohl in einem eindimensionalen Schnitt trotzdem eine Asymmetrie beobachtet werden kann.

In den präsentierten Experimenten wird die Asymmetrie durch eine direkte optische Anregung der Elektronen innerhalb des topologischen Oberflächenzustands erzeugt. Der elektronische Zustand besitzt die dreizählige Symmetrie der Oberfläche, sodass auf den ersten Blick argumentiert werden kann, dass auch die asymmetrische Besetzung eine dreizählige Symmetrie zeigen muss. Die Beobachtung eines nach diesem Symmetrieargument nicht möglichen Photostroms in $\bar{\Gamma}$ - \bar{K} -Richtung und der Phasenversatz in der Azimutabhängigkeit der Kristallausrichtung lassen jedoch einen zusätzlichen Symmetriebruch vermuten. Durch diesen könnte die dreizählige Symmetrie unter Umständen auf eine einzählige Symmetrie reduziert werden und ein Photostrom damit möglich sein.

Auch die beobachteten deutlichen Unterschiede in der Dynamik zwischen der Asymmetrie aufgrund der Kristallorientierung und der Asymmetrie aufgrund des pho-

togalvanischen Effektes könnten auf eine unterschiedliche und unter Umständen nicht dreizählige Verteilung der Asymmetrie im k -Raum zurückzuführen sein.

Zusammenfassend wurde mit den vorgestellten Ergebnissen zur asymmetrischen Besetzung eine Grundlage für die Erzeugung von Photoströmen im Dirac-Kegel von Sb_2Te_3 gelegt. Zur endgültigen Abklärung der Existenz eines Photostroms empfehlen sich zusätzliche Photoemissionsexperimente mit einem Zugriff auf die vollständige k -Raum-Verteilung der Elektronen. Zur Erzeugung der Photoströme erscheinen MIR-Impulse, aufgrund der beobachteten direkten optischen Anregung und der damit verbundenen reduzierten Streuung in den Dirac-Kegel, sowie angesichts der vielfältigen Möglichkeiten der Kontrolle der asymmetrischen Besetzung, als ein äußerst vielversprechender Kandidat.

Kapitel 6

Photoströme in Bi_2Te_3 nach Anregung mit THz-Impulsen

Für die Untersuchung von physikalischen Prozessen und Eigenschaften verschiedenster Materialklassen stellt die Anregung oder Abfrage durch THz-Strahlung eine etablierte und oft genutzte experimentelle Methode dar [199]. Die Entwicklung hochintensiver, phasenstarrer THz-Quellen in den letzten Jahren hat es dabei ermöglicht das Anwendungsgebiet der THz-Strahlung auf die Untersuchung und Kontrolle physikalischer Vorgänge in Materialien auf der Femtosekunden-Zeitskala zu erweitern [200–204]. Auch an topologischen Isolatoren ist bereits eine Vielzahl klassischer Untersuchungen in Verbindung mit THz-Strahlung durchgeführt worden. So wurden unter anderem neben der Absorption [205] und Emission von THz-Strahlung in und aus dem Dirac-Kegel [20, 206, 207] auch der Einfluss des Oberflächenzustands auf die Reflektivität für THz-Strahlung [208, 209], die Dynamik heißer Elektronen [210], topologische Phasenübergänge [211] und der Quanten-Hall-Effekt [212] untersucht.

Die bisher verwendeten Techniken nutzen typischerweise eine Antwort des Gesamtsystems, zum Beispiel die Aussendung von THz-Impulsen oder die Änderung der Reflektivität, um auf die Veränderungen in der Bandstruktur und die Anregung der Elektronen zu schließen. Aufgrund der verwendeten Methoden ist keines dieser Experimente an topologischen Isolatoren in der Lage, die Wechselwirkung zwischen den THz-Impulsen und den Elektronen in der Bandstruktur des Materials direkt zu zeigen. Die Verwendung von zeit- und winkelaufgelöster Photoemission verspricht daher durch ihre direkte Abbildung der Bandstruktur einen wesentlich verbesserten Zugang zum Verständnis der Auswirkungen starker THz-Impulse auf die Eigenschaften topologischer Isolatoren und anderer Materialien.

Bisherige Experimente, die THz-Impulse in Verbindung mit Photoemission nutzen, konzentrieren sich auf den Einfluss des elektrischen Feldes der THz-Impulse bei der Photoemission von Elektronen an Nanostrukturen und -spitzen [213–215]. Dabei wird insbesondere die erhöhte Anzahl der photoemittierten Elektronen aufgrund der Feldüberhöhung und ihre Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld im Vakuum (engl.: *streaking*) untersucht, es werden jedoch keine spektroskopischen Informationen gewonnen.

Dieses Kapitel präsentiert die Resultate der an Bi_2Te_3 durchgeführten zeit- und winkelaufgelösten Photoemissionsexperimente nach Anregung mit intensiven THz-Impulsen. Die Idee des Experimentes ist es, die hohen elektrischen Felder eines THz-Impulses zur direkten Beschleunigung der Elektronen in der Bandstruktur eines topologischen Isolators zu nutzen. Die beschleunigten Elektronen sollten sich als eine Verschiebung der Ladungsträger im k-Raum des Materials zeigen, die sich in einem zweiten Schritt durch die Photoemission mit subzyklen Zeitauflösung direkt in Energie und Impuls messen lässt. Die hohe Lebensdauer der Elektronen im topologisch geschützten Oberflächenzustand im Pikosekundenbereich und eine niedrige Zentralfrequenz der THz-Transienten um 1 THz lassen eine effektive Wechselwirkung zwischen dem elektrischen Feld und den Dirac-Elektronen und damit eine starke Beschleunigung der Ladungsträger vermuten. Sollte eine derartige Beschleunigung der Elektronen möglich sein, so ist eine zeitweise stark asymmetrische Verteilung im k-Raum und damit ein Photostrom im topologischen Isolator zu erwarten.

Die Experimente wurden in Kooperation mit der Arbeitsgruppe „Ultraschnelle Quantenphysik und Photonik“ von Prof. Dr. Rupert Huber in den Laboren der AG Huber in Regensburg durchgeführt. Um die bisher einzigartigen Photoemissionsexperimente mit THz-Anregung und subzyklen Zeitauflösung [25] mit dem in Abschnitt 3.3 beschriebenen Lasersystem durchzuführen, wurde die gesamte Ultrahochvakuumkammer ZAPES I von Marburg nach Regensburg transportiert.

Das vorliegende Kapitel beginnt mit einer Beschreibung der bei THz-Anregung wichtigen Wechselwirkung zwischen den photoemittierten Elektronen und dem elektrischen Feld des THz-Impulses. Insbesondere wird die Möglichkeit der Bestimmung des elektrischen Feldes aus der beobachteten Energie- und Parallelimpulsverschiebung der Photoelektronen vorgestellt. Die experimentellen Ergebnisse werden anschließend unter zwei verschiedenen Gesichtspunkten betrachtet. So wird einerseits die experimentelle Beobachtung der Wechselwirkung bereits photoemittierter Elektronen mit dem THz-Impuls im Vakuum diskutiert. Die experimentellen Ergebnisse werden zusammen mit einer Simulation der klassischen Bewegungsgleichung der Elektronen genutzt, um das eingestrahlte THz-Feld in Amplitude und Phase sowohl für s- als auch p-polarisierte THz-Impulse zu rekonstruieren. Der daran anschließende Abschnitt 6.2 befasst sich mit der Wechselwirkung zwischen dem THz-Impuls und den Elektronen im topologischen Isolator, bevor diese photoemittiert werden. Es wird dabei insbesondere die erstmalig beobachtete Intrabandbeschleunigung im Dirac-Kegel von Bi_2Te_3 und der damit verbundene induzierte Photostrom diskutiert. Die Beschleunigung der Elektronen im Oberflächenzustand durch das elektrische Feld der THz-Impulse und die anschließend durch Streuprozesse hervorgerufenen Relaxation der Ladungsträger wird mittels der semiklassischen Boltzmann-Gleichung simuliert. Auf diese Weise können die Streuraten für elastische und inelastische Streuung im Dirac-Kegel aus den experimentellen Ergebnissen extrahiert werden. Im Anschluss daran folgt in Abschnitt 6.3 eine Betrachtung der Anregung des Systems für hohe Verzögerungen.

6.1 Photoelektronenstreaking mit THz-Impulsen

Die Verwendung von THz-Impulsen mit Feldstärken im Bereich von 100 kV/cm als Anregungsimpulse für Photoemissionsexperimente macht eine Betrachtung der Wechselwirkung zwischen den Laserimpulsen und den bereits photoemittierten Elektronen notwendig. Die hohe Feldstärke und die starre Phasenlage des elektrischen Feldes des THz-Impulses in Verbindung mit den langen Beschleunigungsphasen im niederfrequenten Feld führen auf dem Weg von der Oberfläche zum Elektronendetektor zu einer messbaren Veränderung der Parallelimpulse (Impulsstreaking) und der kinetischen Energie der Elektronen (Energistreaking). Der genaue zeitliche Verlauf und die Stärke dieser Änderungen hängen von der Feldstärke und der Polarisation des eingestrahlten elektrischen Feldes ab. Diese, für optische Anregungen bei Milliwatt-Leistungen und Strahldurchmessern im 100 μm -Bereich vernachlässigbare Wechselwirkung (siehe Abschnitt 2.2.3), kann genutzt werden, um die senkrecht und parallel zur Oberfläche ausgerichteten Komponenten des elektrischen Feldes am Ort der Photoemission, direkt an der Probenoberfläche, in Amplitude und Phase zu bestimmen. Die Messung der Änderung der kinetischen Energie von Photoelektronen, das sogenannte Energistreaking, ist in der Attosekunden Physik eine weit verbreite und etablierte Technik [216–220]. Durch die Verwendung einer winkelaufgelösten Messmethode ist es im Rahmen dieser Arbeit erstmalig gelungen, auch die Änderung des Parallelimpulses der Elektronen zu bestimmen. Durch die kombinierte Messung der Änderung der Energie und des Parallelimpulses ist die für die Interpretation der experimentellen Ergebnisse notwendige Bestimmung der parallelen und senkrechten Komponente des elektrischen Feldes vor der Oberfläche möglich.

Dieser Abschnitt erläutert die beobachtete Beschleunigung der Photoelektronen und die Auswertung der daraus resultierenden Energie- und Impulsverschiebung der Photoemissionsspektren. Es werden zusätzlich die theoretischen Grundlagen der Rekonstruktion des elektrischen Feldes für p- und s-Polarisation der eingestrahlten THz-Impulse sowie die Rekonstruktion des Streakings in Energie und Impulsrichtung in den 2D Photoemissionsdaten dargelegt. Anschließend wird das p-polarisierte elektrische Feld an der Oberfläche der Probe aus den Photoemissionsdaten rekonstruiert und anschließend das auf diese Weise ermittelte Feld verifiziert. Die quantitative Bestimmung des s-polarisierten elektrischen Feldes erfolgt in Abschnitt 6.2.2.

6.1.1 Bestimmung des Elektronenstreakings aus Photoemissionsdaten

In einem Photoemissionsexperiment mit THz-Impulsen beobachtet man, abhängig von der Verzögerung zwischen dem Zeitpunkt der Photoemission und des THz-Impulses eine Verschiebung (engl.: *streaking*) des energie- und winkelaufgelösten Photoemissionsspektrum im Elektronendetektor, sowohl in Energie- als auch in Parallelimpulsrichtung. Diese Energie- und Impulsänderung der Elektronen sind auf eine Wechselwirkung mit dem elektrischen und magnetischen Feld des THz-Impulses zurückzuführen. Die Änderungen liegen bei den hier verwendeten Feldstärken um 100 kV/cm bei wenigen 100 meV beziehungsweise wenigen 10^{-3} \AA^{-1} und sind in Abbildung 6.1 beispielhaft für die Anregung mit p-polarisierten THz-Impulsen zu zwei verschiedenen Verzögerungen direkt erkennbar. Aufgrund der im Vergleich zum Absolutwert der kinetischen Energie ε_{kin} nur geringen Änderung ist das Photoemissionsspektrum fast ausschließlich in Energie- und Impulsrichtung verschoben. Erst bei deutlich größeren $\Delta\varepsilon_{\text{kin}}$ beobachtet man Stauchungen und Streckungen durch die Abbildung im Linsensystem.

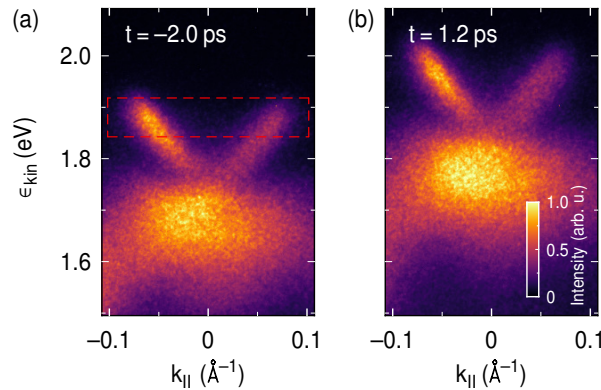


Abb. 6.1: Photoemissionsspektrum von Bi_2Te_3 für unterschiedliche Verzögerungen zwischen THZ- und UV-Impuls. (a) Die Photoemission vor Eintreffen des THz-Impulses zeigt keine Veränderung im Vergleich zu Messungen ohne THz-Impulse. (b) Die Verzögerung ist so gewählt, dass die photoemittierten Elektronen mit einem Teil des elektrischen Feldes wechselwirken. Die resultierende Verschiebung in Energie- und Impulsrichtung ist deutlich zu erkennen.

Die Verschiebung des Photoemissionsspektrums erlaubt eine einfache und automatisierte Auswertung des Energie- und Impulsstreakings durch den THz-Impuls. Dafür wird eine Region in einem Referenz-Photoemissionsspektrum ohne THz-Feld mit möglichst charakteristischer Struktur ausgewählt. In Abbildung 6.1 (a) ist eine mögliche Region rot gestrichelt eingezeichnet. Zur Bestimmung des Streakings wird das zu überprüfende Spektrum solange diskret in Energie und Parallelimpuls verschoben, bis die beste Übereinstimmung zur Referenzregion gefunden wurde. Als Maß für

die Abweichung, in Bezug zu einer Referenzregion Reg , wird

$$\chi^2(\Delta\varepsilon_{\text{kin}}, \Delta k_{\parallel}, S) = \sum_{(x,y) \in Reg} \left(S \cdot I_{\text{delay}}(x + \Delta\varepsilon_{\text{kin}}, y + \Delta k_{\parallel}) - I_{\text{ref}}(x, y) \right)^2 \quad (6.1)$$

berechnet und anschließend das Minimum von χ^2 bestimmt. Der Skalierungsfaktor S korrigiert räumliche Inhomogenitäten des Detektors sowie verzögerungsabhängige Änderungen der Laserintensität und wird dazu in einem gewählten Bereich ebenfalls diskret variiert. Die pixelweisen Differenzen der Photoemissionsintensitäten I_{ref} und I_{delay} des Referenz- und des untersuchten Spektrums werden innerhalb der Referenzregion aufsummiert und dienen als Maß für die Abweichung.

Aus der Bestimmung des Minimums von $\chi^2(\Delta\varepsilon_{\text{kin}}, \Delta k_{\parallel}, S)$ kann die Verschiebung des untersuchten Spektrums im Vergleich zum Referenzspektrum bestimmt werden. Die Bestimmung der Verschiebung ist durch die Verteilung der Funktionswerte in χ^2 mit typischerweise einem Minimum einfach und genau möglich. Die bestimmten Werte $\Delta\varepsilon_{\text{kin}}$ und Δk_{\parallel} hängen nur geringfügig von der genauen Wahl der Position und Größe der Referenzregion ab, die präsentierte Vorgehensweise stellt damit eine robuste Methode zur Bestimmung des Energie- und Impulsstreakings der Photoemissionsspektren dar.

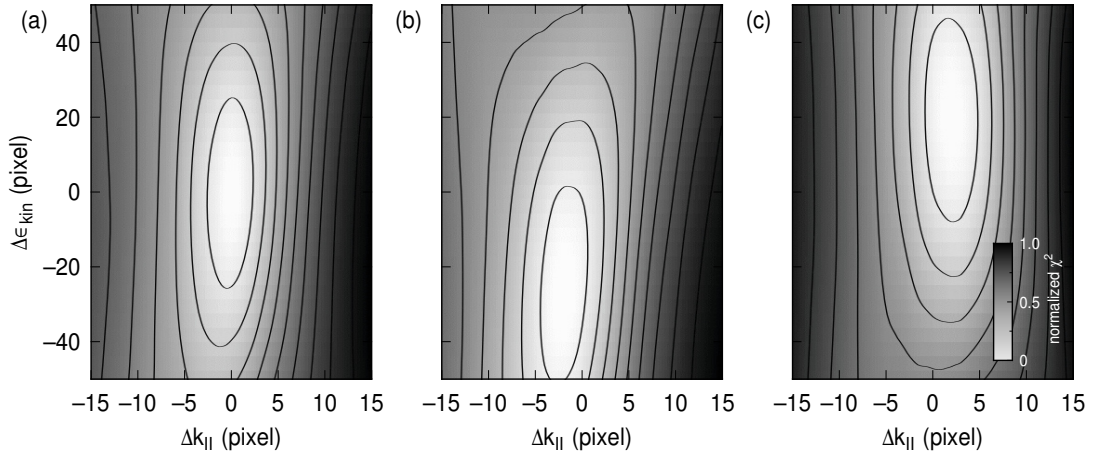


Abb. 6.2: Normiertes χ'^2 als Abhängigkeit der Verschiebung in Energie $\Delta\varepsilon_{\text{kin}}$ und Parallelimpuls Δk_{\parallel} für verschiedene Verzögerungen zwischen s-polarisiertem THz- und UV-Impuls von (a) -1,86 ps (b) 0,14 ps und (c) 0,64 ps. Die Äquipotentiallinien unterteilen die Daten in 0,1 Schritten. Das aufgetragene χ^2 ist jeweils zum Referenzdatensatz bei -1,86 ps berechnet.

Zur besseren Darstellung kann die in die Bestimmung von $\chi^2(\Delta E_{\text{kin}}, \Delta k_{\parallel}, S)$ einfließende Variable S eliminiert werden. Das bezüglich der Skalierung minimierte

$$\chi'^2(\Delta E_{\text{kin}}, \Delta k_{\parallel}) = \min_{\forall s \in S} \chi^2(\Delta E_{\text{kin}}, \Delta k_{\parallel}, s) \quad (6.2)$$

als Funktion der Energie- und Impulsverschiebung ermöglicht es, die Abweichung in Abhängigkeit von ΔE_{kin} und Δk_{\parallel} darzustellen. In Abbildung 6.2 ist $\chi'^2(\Delta E_{\text{kin}}, \Delta k_{\parallel})$ beispielhaft für die in Abbildung 6.6 ausführlich diskutierten Photoemissionsspektren dargestellt. Aus der Position des Minimums können sowohl die Energieverschiebung $\Delta \varepsilon_{\text{kin}}$ als auch die Verschiebung Δk_{\parallel} in Parallelimpulsrichtung bestimmt werden. Mit einer Auswertung als Funktion der Verzögerung kann anschließend, wie in Abschnitt 6.1.2 und 6.1.3 beschrieben, das elektrische Feld bestimmt werden.

6.1.2 Rekonstruktion p-polarisierter Felder

Die Wechselwirkung photoemittierter Elektronen und allgemein geladener Teilchen mit THz-Feldern und -Impulsen beruht auf der Lorentzkraft

$$\vec{F} = q (\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (6.3)$$

mit der Ladung des Teilchens q ($q = -e$ im Falle von Elektronen), dem elektrischen Feld \vec{E} , dem Magnetfeld \vec{B} und der Geschwindigkeit \vec{v} des Teilchens. Im Falle elektromagnetischer Wellen im Vakuum gilt $B_0 = E_0 / c$. Da die hier untersuchten Photoelektronen mit typischen Energien im Bereich einiger Elektronenvolt eine Geschwindigkeit $v \ll c$ besitzen, kann der magnetische Anteil der Lorentzkraft vernachlässigt werden und die zeitabhängige Geschwindigkeit der Photoelektronen ist

$$\vec{v}(t) = -\frac{e}{m} \int_t^\infty \vec{E}(t') dt' + \vec{v}_0 \quad (6.4)$$

zum Zeitpunkt t der Photoemission. Da die zeitlich gemittelte Beschleunigung und die damit verbundene Änderung der kinetischen Energie

$$\varepsilon_{\text{kin}}(t) = \frac{1}{2} m \vec{v}(t)^2 \quad (6.5)$$

durch das elektrische Feld eines elektromagnetischen Impulses im Vakuum verschwindet, gilt unter Vernachlässigung der Beschleunigung durch das Magnetfeld $\vec{v}(t) = \vec{v}_0$ und $\varepsilon(t) = \varepsilon_0$ für Zeiten vor und nach dem THz-Impuls. Unter Berücksichtigung der Beschleunigung im Magnetfeld ist auch im zeitlichen Mittel aufgrund des ponderomotiven Potentials eine endliche Beschleunigung zu erwarten (siehe Abschnitt 2.2.3). Dieser Effekt kann hier vernachlässigt werden, da er nur für deutlich stärkere als hier verwendete Felder [221] oder für Teilchen mit nahezu relativistischen Geschwindigkeiten [222] einen deutlichen Einfluss auf die Teilchengeschwindigkeit zeigt. Es gilt somit der Zusammenhang

$$\int_t^\infty \vec{E}(t') dt' = - \int_{-\infty}^t \vec{E}(t') dt'. \quad (6.6)$$

Dieser ist insbesondere für die Rekonstruktion des elektrischen Feldes und den Vergleich zwischen dem Experiment und der Simulation der zeitabhängigen Energieän-

derung nach Wechselwirkung der Elektronen mit dem elektrischen Feld vorteilhaft. Durch einen Vergleich der auf die verschiedenen Weisen berechneten $\varepsilon(t)$ mit dem Experiment ist die Identifikation weiterer, die Energie des Photoemissionsspektrums beeinflussender Aspekte möglich (siehe Abschnitt 6.3). Für die im Photoemissionsexperiment gemessene, durch das elektrische Feld hervorgerufene zeitliche Änderung der kinetischen Energie gilt nach Gleichung 6.4 und 6.5

$$\frac{d\varepsilon_{\text{kin}}(t)}{dt} = -e \vec{v}(t) \cdot \vec{E}(t). \quad (6.7)$$

Im Falle senkrechter Emission und aufgrund der hohen Abschirmung der elektrischen Feldkomponenten parallel zur Oberfläche kann die Gleichung 6.7 weiter zu

$$\frac{d\varepsilon_{\text{kin}}}{dt} = -e \sqrt{2 m e \varepsilon_{\text{kin}}(t)} E_{\perp}(t) \quad (6.8)$$

vereinfacht werden, da die Beschleunigung nahezu ausschließlich senkrecht zur Oberfläche wirkt. Die Feldkomponente senkrecht zur Oberfläche der erzeugten stehenden Welle vor der Oberfläche $E_{\perp}(t)$ kann daher direkt und allein aus der zeitabhängigen kinetischen Energie der Photoelektronen mittels

$$E_{\perp}(t) = -\frac{d\varepsilon_{\text{kin}}}{dt} \left(2 m e^2 \varepsilon_{\text{kin}}(t) \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (6.9)$$

bestimmt werden. Über den aus der experimentellen Geometrie bekannten Einfallswinkel θ und der Reflektivität r_p kann anschließend die Berechnung der Feldstärke des eingestrahnten p-polarisierten THz-Impulses aus der senkrechten Komponente $E_{\perp}(t)$ erfolgen.

Somit ist es möglich, aus dem zeitabhängigen Energiestreaking der Photoemissionsdaten das p-polarisierte elektrische Feld in Amplitude und Phase zu rekonstruieren. Ein Vergleich des aus Photoemissionsdaten rekonstruierten Feldes mit einem mittels elektrooptischem Abtasten (engl.: *electro optical sampling*, *EOS*) bestimmten Feld in Kapitel 6.1.4 zeigt die exzellente Übereinstimmung der Ergebnisse beider Methoden.

6.1.3 Rekonstruktion s-polarisierter Felder

Die Rekonstruktion s-polarisierter Felder kann theoretisch analog zur p-Polarisation aus der Änderung der kinetischen Energie der Photoelektronen erfolgen. Aufgrund der Fresnelfaktoren ist die Feldstärke der parallelen Komponente der Überlagerung von einfallendem und reflektiertem Strahl auf wenige Prozent der eingestrahnten Feldstärke abgeschwächt. Vergleicht man die resultierende Energieänderung $\Delta\varepsilon_{\text{streak}}(t)$ bei gleicher Feldstärke des einfallenden THz-Impulses für p- und s-Polarisation, so ist dementsprechend auch die Energieänderung für s-Polarisation deutlich kleiner. Die vorliegende experimentelle Geometrie ermöglicht jedoch zusätzlich eine direkte Rekon-

struktion aus dem Impulsstreaking der Photoemissionsdaten. Diese zur p-Polarisation komplementäre Auswertung wird ermöglicht, da das stark abgeschirmte elektrische Feld der s-polarisierten THz-Impulse parallel zur Oberfläche und gleichzeitig entlang der Spaltrichtung des Elektronendetektors ausgerichtet ist. Damit verursacht eine durch das elektrische Feld $E_{\parallel}(t)$ verursachte Beschleunigung eine Änderung des Parallelimpulses und aufgrund der Dispersion der freien Elektronen eine Änderung der kinetischen Energie. Der erste Teil dieses Abschnitts behandelt die Änderung des Parallelimpulses, am Ende dieses Abschnitts werden die Energieänderung aufgrund der Impulsänderung und ihr Einfluss auf das Photoemissionsspektrum untersucht.

Für die Änderung des Parallelimpulses folgt aus 6.3 und $m \cdot \vec{v} = \vec{p} = \hbar \vec{k}$, sowie unter Vernachlässigung der Wechselwirkung mit dem Magnetfeld \vec{B} (da weiterhin $v \ll c$), direkt

$$\begin{aligned} \frac{dk_{\text{streak}}}{dt} &= -\frac{e}{\hbar} E_{\parallel}(t) \\ k_{\text{streak}}(t) &= -\frac{e}{\hbar} \int_t^{\infty} E_{\parallel}(t') dt'. \end{aligned} \quad (6.10)$$

Die transiente Änderung des Parallelimpulses dk_{streak} ist damit unabhängig von Energie und Impuls des betrachteten Elektrons und nur vom elektrischen Feld parallel zur Oberfläche in Spaltrichtung abhängig. Die Parallelimpulsverschiebung ist damit über das gesamte Spektrum im Detektor konstant.

Das parallel zur Oberfläche orientierte elektrische Feld $E_{\parallel}(t)$ der Überlagerung von einfallendem und reflektiertem s-polarisiertem THz-Impuls kann somit nach Bestimmung des Impulsstreakings $k_{\text{streak}}(t)$ nach Abschnitt 6.1.1 aus

$$E_{\parallel}(t) = -\frac{\hbar}{e} \frac{dk_{\text{streak}}}{dt} \quad (6.11)$$

rekonstruiert werden. Da die gemessene Änderung dk_{streak}/dt des Parallelimpulses k_{\parallel} dabei ohne weitere Näherung ausschließlich durch das elektrische Feld des s-polarisierten THz-Impulses verursacht wird, ist die Methode selbst bei Auftreten p-polarisierter Feldkomponenten in der Lage, spezifisch die s-Komponente zu rekonstruieren. Die Rekonstruktion von Phase und Amplitude des Feldverlaufs s-polarisierter THz-Impulse ist daher wie auch bei p-Polarisation allein aus den zeitaufgelösten Photoemissionsmessungen möglich. Aufgrund der Kontinuität der parallel zur Oberfläche verlaufenden Feldkomponenten sind das parallele Feld außerhalb und innerhalb des Festkörpers identisch.

Die für alle Elektronen konstante Impulsänderung Δk_{streak} aufgrund der Beschleunigung in der Parallelkomponente des elektrischen Feldes führt aufgrund der Disper-

sion der freien Elektronen im Vakuum zu einer zusätzlichen Energieänderung

$$\Delta\varepsilon = \frac{\partial\varepsilon}{\partial k} k_{\text{streak}} = \frac{\hbar^2 k_{\parallel}}{m} \cdot k_{\text{streak}}. \quad (6.12)$$

Die Änderung der kinetischen Energie eines Elektrons ist somit proportional zum für alle Elektronen gleich großen k_{streak} und skaliert linear mit dem Parallelimpuls k_{\parallel} des Elektrons. Die Energieänderung nimmt daher mit steigendem Parallelimpuls zu und ist somit nicht mehr für alle Elektronen konstant.

Im Photoemissionsspektrum eines linear dispergierenden Dirac-Kegels wird dessen Dispersion $\varepsilon(k) = \hbar v_F k$ nach Beschleunigung im parallelen Feld zu

$$\varepsilon(k_{\parallel}) = \hbar k_{\parallel} (v_F + \frac{\hbar k_{\text{streak}}}{m}) \quad (6.13)$$

abgewandelt. Die lineare Dispersion erscheint damit, wie in Abbildung 6.3 skizziert, um einen Winkel $\Delta\alpha$ verkippt. Durch eine Auswertung des Winkels $\Delta\alpha$ in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen THz-Impuls und dem Zeitpunkt der Photoemission ist die Bestimmung des elektrischen Feldes $E_{\parallel}(t)$ parallel zur Oberfläche möglich, in den Experimenten im Rahmen dieser Arbeit ist $\Delta\alpha$ typischerweise kleiner 5° . Die Bestimmung von $E_{\parallel}(t)$ erfolgt daher aufgrund der höheren Genauigkeit über die Messung des Impulsstreakings und einer Berechnung nach Gleichung 6.11.

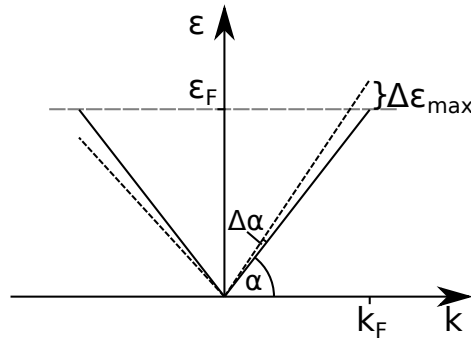


Abb. 6.3: Die Beschleunigung der emittierten Photoelektronen aus dem Dirac-Kegel führt zu einer Verkipfung der beobachteten linearen Dispersion um den Winkel $\Delta\alpha$.

Aufgrund der Verkipfung des Spektrums kommt es zu einer Energieverschiebung der Elektronen an der Fermienergie von

$$\Delta\varepsilon_{\text{max}} = \frac{\hbar k_F}{m} \int_t^\infty e E_{\parallel}(t') dt'. \quad (6.14)$$

Die Lage der Verteilungsfunktionen im Photoemissionsspektrum beruht daher auf einer Überlagerung der Beschleunigung der Elektronen nahe ε_F im Festkörper durch das elektrische Feld (siehe Kapitel 2.3.2) und der entgegengesetzt ausgerichteten Beschleunigung aller Elektronen im Vakuum (Gleichung 6.14). In den im Rahmen dieser

Arbeit durchgeführten Experimenten an Bi_2Te_3 ist die Parallelgeschwindigkeit der vom Fermi-niveau photoemittierten Elektronen ($\hbar k_F/m = 0,87 \text{ \AA fs}^{-1}$) deutlich kleiner als deren Geschwindigkeit im Festkörper ($v_F = 4,1 \text{ \AA fs}^{-1}$). Die beobachtete Verschiebung der Verteilungsfunktionen wird daher von der Beschleunigung im Festkörper dominiert und der Beitrag der Verkipfung des Photoemissionsspektrums wird in der Auswertung vernachlässigt.

6.1.4 Quantitative Bestimmung p-polarisierter Felder

In Abbildung 6.1 ist das Photoemissionsspektrum von Bi_2Te_3 nach Photoemission mit 201 nm Impulsen zu verschiedenen Verzögerungen zwischen THz- und UV-Impuls dargestellt. Für eine Verzögerung von $t = -2,0 \text{ ps}$ ist keine Wechselwirkung zwischen dem elektrischen Feld und den Elektronen im Festkörper möglich. Das gemessene Photoemissionsspektrum ist identisch zum Spektrum ohne THz-Feld, obwohl die Photoelektronen auf dem Weg zum Detektor mit dem gesamten THz-Impuls wechselwirken können. Eine Betrachtung des Spektrums bei 1,2 ps Verzögerung zeigt eine deutliche Verschiebung der gesamten Photoemission um ungefähr 100 meV zu höheren Energien. Die Verschiebung erfolgt nahezu homogen über das gesamte gemessene Spektrum. Außer der Energieänderung erscheinen keine signifikanten Variationen des Spektrums, eine Veränderung der Besetzung oder eine Anregung der Elektronen im Festkörper ist für das p-polarisierte Feld nicht zu erkennen.

Die Spektren an Zeitpunkten mit Photoemission bei hohen Feldstärken zeigen zusätzlich zur Verschiebung in Energierichtung eine Verbreiterung der Zustände in Energie- und Impulsrichtung, sowie eine in Energierichtung zusätzlich gestreckte Abbildung. Eine mögliche Ursache dafür könnten unter anderem durch die Struktur der Oberfläche erzeugte lokale Feldinhomogenitäten nahe der Oberfläche sein. Werden die Elektronen zu Zeitpunkten hoher Feldstärken emittiert, so werden die an unterschiedlichen Orten emittierten Elektronen zuallererst mit ortsabhängig unterschiedlichen, teilweise überhöhten Feldern und danach erst im Vakuum mit den homogenen, schwachen Feldamplituden wechselwirken. Das Resultat wäre eine inhomogene Wechselwirkung und damit eine Verbreiterung des Spektrums. Bei einer Emission zu Zeitpunkten schwacher Felder spielen die lokalen Feldinhomogenitäten an der Oberfläche im Vergleich mit den zu einem späteren Zeitpunkt wirkenden starken, homogenen Feldern im Vakuum nur eine untergeordnete Rolle und das Spektrum wird nicht zusätzlich verbreitert.

Das Einstrahlen eines p-polarisierten THz-Impulses auf die Oberfläche eines topologischen Isolators wie Bi_2Te_3 führt aufgrund der hohen Reflektivität im THz-Bereich und des Phasensprungs der senkrechten Komponente des reflektierten Anteils zur Ausbildung einer intensiven stehenden Welle vor der Oberfläche. Da die zur Oberfläche parallelen Feldkomponenten sich gegenseitig fast vollständig auslöschen, hat das resultierende Feld im Vakuum bei nicht senkrechtem Einfall nahezu ausschließlich

Feldkomponenten senkrecht zur Oberfläche. In gleichem Maße, wie das resultierende Feld außerhalb des Festkörpers verstärkt ist, wird das Feld im Festkörper nahezu vollständig unterdrückt. Man erwartet daher, dass die Wechselwirkung der Elektronen mit den p-polarisierten THz-Impulsen vornehmlich nach der Photoemission und damit außerhalb der Probe stattfindet.

Die Verschiebung des Photoemissionsspektrums wird, nach der in Abschnitt 6.1.1 detailliert beschriebenen Methode, für jede Verzögerung zwischen THz- und UV-Impuls bestimmt. Die Änderung der Energie ist in Abbildung 6.4 (a) als Funktion der Verzögerung (rote Punkte) aufgetragen. Das gesamte Spektrum verschiebt sich für Verzögerungszeiten zwischen -2 und 2 ps um bis zu 300 meV in positive und negative Energierichtung. Eine Berechnung der Feldstärke der stehenden Welle vor der Oberfläche aus der gemessenen Verschiebung nach Gleichung 6.9 ergibt den in Abbildung (b) dargestellten Feldverlauf (blaue Punkte). Das elektrische Feld vor der Oberfläche erreicht Feldstärken von 25 kV cm^{-1} und ist von einem Hauptminimum dominiert.

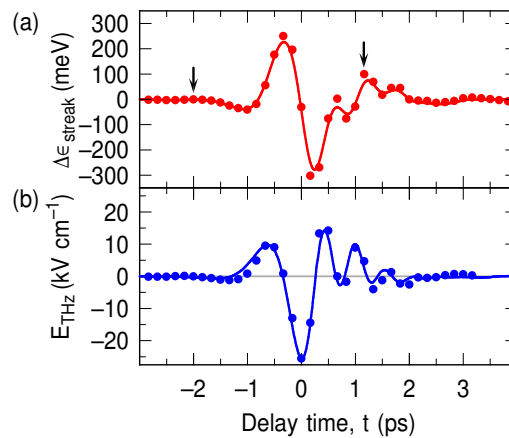


Abb. 6.4: (a) Energieverschiebung des Photoemissionsspektrums als Funktion der Verzögerung zwischen THz-Anrege- und UV-Abfrageimpuls. (rote Punkte: experimentelle Daten; rote Linie: Simulation, siehe Abschnitt 6.1.5) Pfeile kennzeichnen die Verzögerungen der Spektren in Abbildung 6.1. (d) Extrahiertes elektrisches Feld vor der Probe (blaue Punkte) und skaliertes, in der Verzögerung angepasstes Feld aus externer EOS Messung.

Aus der rekonstruierten stehenden Welle, als Summe von eingestrahlt und reflektiertem elektrischen Feld, lassen sich unter Berücksichtigung der Fresnelfaktoren, des Brechungsindex $n(\omega)$ und der Gouyphase ϕ_G [223] der zeitliche Verlauf und die Amplitude des eingestrahlt Feldes berechnen. Die Gouyphase eines Gaußstrahls beträgt im Fokus $\phi_G = 0^\circ$ und variiert innerhalb der Rayleighlänge z_R zwischen $\pm 45^\circ$. Aufgrund der Durchführung des Experimentes im Fokus des THz-Impulses und der großen Rayleighlänge von $z_R = 3,4 \text{ mm}$ kann für die Auswertung von $\phi_G = 0^\circ$ ausgegangen werden. Unter der Annahme eines konstanten Brechungsindex und für $\phi_G = 0^\circ$ entspricht der berechnete Feldverlauf des eingestrahlt THz-Impulses bis auf einen

Faktor der stehenden Welle vor der Oberfläche. Ein Vergleich zwischen dem aus dem Energiestreaking extrahierten Feld und dem Feldverlauf aus einer extern durchgeführten EOS Messung in Abbildung 6.4 (d) zeigt die hervorragende Übereinstimmung der Ergebnisse beider Messmethoden.

Aus der Bestimmung des von dem THz-Impuls verursachten Energiestreakings von Photoelektronen lässt sich auf einzigartige Weise der zeitliche Verlauf und die Amplitude des elektrischen Feldes direkt am Ort der Probe bestimmen. Die direkte Messung der stehenden Welle vor der Oberfläche erlaubt es, die Phasenlage und die Amplitude des elektrischen Feldes unabhängig von externen Messungen zu bestimmen. Dass die Methode ohne Kenntnis der Größen $n(\omega)$ und ϕ_G das elektrische Feld bestimmen kann, stellt einen großen Vorteil für die Auswertung und Interpretation experimenteller Ergebnisse dar.

Die an dieser Stelle logisch folgende Abhandlung zur quantitativen Bestimmung des s-polarisierten elektrischen Feldes ist in den Abschnitt 6.2.2 verschoben. Die beobachtete, kleine Parallelimpulsverschiebung des Spektrums ist durch die starke Intrabandbeschleunigung der Elektronen im Oberflächenzustand überlagert. Aus diesem Grund wird in Abschnitt 6.2.1 zuerst die Intrabandbeschleunigung diskutiert und ausgewertet, um anschließend das, die Beschleunigung treibende, elektrische Feld in Abschnitt 6.2.2 zu bestimmen. In Abschnitt 6.2.3 wird anschließend das extrahierte Feld zur Simulation der Intrabandbeschleunigung genutzt.

6.1.5 Interpolation des elektrischen Feldes und Simulation der Elektronenenergie

Das im vorherigen Abschnitt rekonstruierte elektrische Feld ist unter der Vernachlässigung des magnetischen Feldes und der zur Oberfläche parallel ausgerichteten Komponenten des THz-Impulses berechnet worden und ist nur für wenige diskrete Zeitpunkte bekannt. Für weitere Berechnungen und Auswertungen muss das elektrische Feld in eine kontinuierliche und stetige Form überführt werden. Zum Nachweis der Zulässigkeit der Näherungen und zur Überprüfung des kontinuierlichen Feldverlaufs können aus dem rekonstruierten Feld die Energie- und Impulsverschiebung der Photoelektronen in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen THz- und UV-Impuls bestimmt werden. Die Abweichung der berechneten zur gemessenen Verschiebung ist ein Maß für die Genauigkeit des berechneten Feldes.

Für die Verifikation des rekonstruierten THz-Feldes wird für verschiedene Zeitpunkte der Photoemission die Trajektorie des photoemittierten Elektrons im elektromagnetischen Feld vor der Probe ermittelt. Hierzu erfolgt eine Integration der Bewegungsgleichung der Elektronen in allen drei Raumrichtungen unter Berücksichtigung der Wechselwirkung sowohl mit dem elektrischen als auch dem magnetischen Feld des

THz-Impulses. Das zugehörige Differentialgleichungssystem

$$\begin{aligned}\frac{d\vec{v}(t)}{dt} &= -e/m \cdot (\vec{E}(\vec{r},t) + \vec{v}(t) \times \vec{B}(\vec{r},t)) \\ \frac{d\vec{r}(t)}{dt} &= \vec{v}(t)\end{aligned}\tag{6.15}$$

wird numerisch integriert, der verwendete Algorithmus DOPRI5 ist bereits in SciPy implementiert [224]. Das für die Differentialgleichung nötige ortsabhängige elektrische Feld $\vec{E}(\vec{r},t)$ ist als Überlagerung von einem in Richtung Koordinatenursprung eingestrahlten und einem reflektierten Gaußstrahl modelliert. Aus den experimentellen Eckdaten lässt sich die Strahltaile $w_0 = 0,58 \text{ mm}$ berechnen. Die große Rayleighlänge $z_0 = 3,5 \text{ mm}$ erlaubt es in Verbindung mit der geringen Geschwindigkeit der Elektronen den Strahldurchmesser als konstant $w(z) = w_0$ anzunehmen und die Krümmung der Phasenfronten zu vernachlässigen. Das Magnetfeld wird entsprechend der Maxwell-Gleichungen aus dem elektrischen Feld abgeleitet.

Die in den Experimenten typischerweise verwendeten Verzögerungsschrittweiten $\Delta t = 50 \dots 200 \text{ fs}$ erzeugen eine entsprechend körnige Rekonstruktion des elektrischen Feldes. Für Integration der Bewegungsgleichung muss das elektrische Feld in eine stetige Form überführt und dafür interpoliert werden. Im Rahmen dieser Arbeit ist die Interpolation durch Anpassung eines Polynomzuges (engl.: *spline*) 5-ten Grades oder eines kubischen Splines durch die rekonstruierten Messpunkte erfolgt. Das Integral über den ermittelten Feldverlauf ist, wie für elektromagnetische Impulse gefordert, auf null gesetzt. Die Wahl eines Polynomzuges führt bei den hier verwendeten Zeitschritten ohne manuelle Anpassungen zu einem rekonstruierten Feldverlauf mit hoher Ähnlichkeit zu den in EOS Messungen ermittelten THz-Transienten.

In Abbildung 6.5 (a) ist das aus der gemessenen Energieverschiebung (siehe Abbildung 6.4) berechnete elektrische Feld E_{THz} der stehenden Welle vor der Oberfläche (offene blaue Punkte) nach Anregung mit einem p-polarisierten THz-Impuls gezeigt. Der aus den Datenpunkten mittels kubischem Spline interpolierte Feldtransient (blaue Linie) verläuft konstruktionsbedingt direkt durch die Messwerte. Ein Vergleich mit dem in der Amplitude skalierten Transienten aus einer externen EOS Messung (grüne Linie) zeigt, dass die Rekonstruktion mittels eines Splines den charakteristischen Verlauf der THz-Impulse gut abbilden kann. Die Abweichungen zwischen eingestrahltem Feld und der stehenden Welle zeigen sich in der leicht unterschiedlichen Phasenlage der einzelnen Halbzyklen im Bereich 0,5 bis 2 ps und den verschiedenen schnellen Anstiegen bei -1 ps. Diese Unterschiede sind wahrscheinlich auf den nicht konstanten Brechungsindex des Materials zurückzuführen, da durch diesen bei Reflektion eine zusätzliche Phase auf die einzelnen Frequenzkomponenten übertragen werden kann. Das sehr ähnliche Amplitudenverhältnis der Extrema zwischen extern und vor der Probe gemessenem Feld spricht für eine gleiche Gouyphase beider Strahlen.

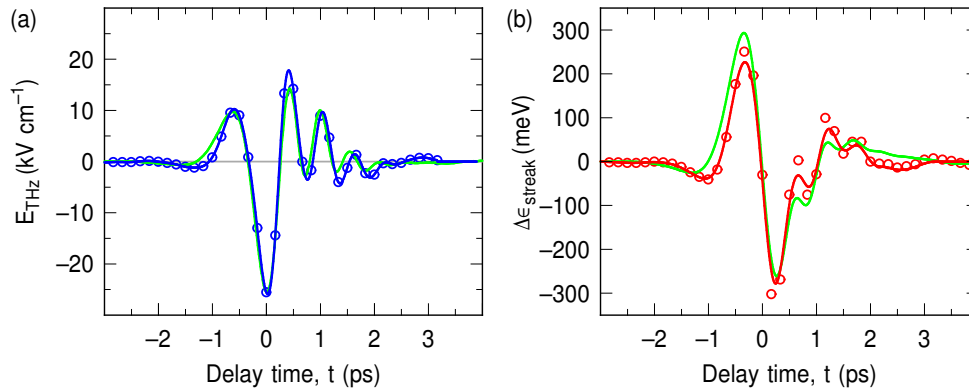


Abb. 6.5: (a) Vergleich des aus den berechneten Punkten des THz-Impulses (offene blaue Punkte) mittels kubischem Spline rekonstruierten Feldtransienten (blaue Kurve) mit dem extern gemessenen und skalierten THz-Transienten (grüne Linie). (b) Die Energieänderung $\Delta\epsilon_{\text{streak}}$ als Ergebnis der dreidimensionalen Simulation aus dem rekonstruierten (rote Linie) und dem Feld aus der EOS Messung (grüne Linie). Die offenen roten Punkte geben die gemessene Energieverschiebung an.

Eine direkte Überprüfung des rekonstruierten Feldes ist durch Integration der Bewegungsgleichung der Photoelektronen möglich. In Abbildung 6.5 (b) ist neben den experimentellen Daten $\Delta\epsilon_{\text{streak}}$ (offene rote Kreise) auch die aus dem rekonstruierten Feld berechnete Energieverschiebung der Elektronen (rote Linie) eingezeichnet. Die Ergebnisse der Simulation sind über einen großen Bereich der Verzögerung identisch mit den experimentellen Daten. Der Vergleich bestätigt damit, dass das aus den Daten der Energieverschiebung rekonstruierte Felde mit der durchgeführten Interpolation das reale Feld der stehenden Welle im Vakuum vor der Probe beschreibt. Dabei werden sowohl die Amplitude als auch die Phasenlage der stehenden Welle mit hoher Genauigkeit extrahiert. Die hohe Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment bestätigt die Gültigkeit der bei der Extraktion des Feldes getätigten Näherungen. Im Vergleich zur Simulation aus dem rekonstruierten Feld zeigen die Simulationsergebnisse mit dem THz-Transienten aus der EOS Messung (grüne Linie) eine deutlich stärkere Abweichung zur experimentellen Energieverschiebung. Dabei ist neben einer teils unterschiedlichen Amplitude insbesondere die Phasenlage einzelner Halbzyklen verschoben. Durch den integrativen Charakter der Wechselwirkung, welcher insbesondere Abweichungen zu frühen Zeitpunkten überproportional verstärkt, führen die relativ kleinen Unterschiede in den Feldern zu hohen Abweichungen der berechneten Energieverschiebung.

Zusammengefasst stellt die präsentierte Rekonstruktion und Interpolation des p-polarisierten elektrischen Feldes aus der gemessenen Energieverschiebung $\Delta\epsilon_{\text{streak}}$ der Photoemissionsspektren eine äußerst zuverlässige Methode zur Messung eines elektrischen Feldes dar. Sowohl die Amplitude als auch die Phase der stehenden Welle an der Probenoberfläche können mit hoher Genauigkeit bestimmt werden. Über eine Simula-

tion der Bewegung der Photoelektronen kann die Genauigkeit des rekonstruierten Feldes direkt festgelegt werden. Aus dem Vergleich der berechneten Energieverschiebung für ein rekonstruiertes und ein extern gemessenes Feld zeigt sich die Notwendigkeit der Rekonstruktion des Feldes vor der Probe, da bereits kleine Abweichungen in Amplitude und Phasenlage des elektrischen Feldes zu hohen Abweichungen des Energie- und Impulsstreakings der Photoelektronen führen.

6.2 Intrabandbeschleunigung von Dirac-Elektronen

In einem Photoemissionsexperiment mit THz-Impulsen als Anregung lassen sich die Wechselwirkungen zwischen THz-Impuls und Elektronen zwei scharf voneinander getrennten Zeitbereichen zuordnen, den Wechselwirkungen im Material vor der Photoemission und der Wechselwirkung im Vakuum nach der Photoemission. Die in Abschnitt 6.1 diskutierten Wechselwirkungen nach der Photoemission sind das Energie- und Impulsstreaking des Photoemissionsspektrums mit seiner charakteristischen Verschiebung der Spektren im Detektor. Für alle im folgenden präsentierten Photoemissionsspektren wurde diese Verschiebung auf dem Detektor korrigiert (siehe Abschnitt 6.1.1), die messbaren Veränderungen in den „stabilisierten“ Spektren sind damit direkt auf eine Wechselwirkung zwischen Elektronen und dem THz-Impuls im Material zurückzuführen.

Die im folgenden Abschnitt diskutierten Ergebnisse konzentrieren sich auf durch die Wechselwirkung mit s-polarisierten THz-Impulsen hervorgerufene Anregungen und Veränderungen in der Besetzung der Elektronen im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 . Dabei werden in einem ersten Teilabschnitt die experimentellen Ergebnisse präsentiert und die erstmalig direkt im k-Raum beobachtete Intrabandbeschleunigung von Elektronen im Dirac-Kegel vorgestellt. Anschließend wird im zweiten Teil aus der beobachteten Asymmetrie der Ladungsträger der induzierte Photostrom extrahiert. Im zweiten Abschnitt wird das elektrische Feld parallel zur Oberfläche aus den Photoemissionsdaten extrahiert. Im Rahmen der Simulation der Dynamik der Asymmetrie durch Verwendung der Boltzmann-Gleichung im letzten Abschnitt, können mit Hilfe des auf diese Weise bestimmten elektrischen Feldes in der Probe die elastischen und inelastischen Streuzeiten der Elektronen im topologischen Oberflächenzustand bestimmt werden.

6.2.1 Erzeugung von Photoströmen mittels Intrabandbeschleunigung

In Abbildung 6.6 sind Photoemissionsspektren für drei verschiedene Verzögerungen t zwischen dem THz-Anregungsimpuls und UV-Abfrageimpuls gezeigt. Aus den experimentellen Daten wurde das Streaking der Spektren in Energie- und Impulsrichtung entfernt. Das zum Vergleich genutzte elektrische Feld ist aus dem Impulsstreaking der Photoemissionsspektren rekonstruiert, eine detaillierte Beschreibung der Bestimmung des Feldes folgt in Abschnitt 6.2.2.

Das Spektrum vor Eintreffen des s-polarisierten THz-Impulses ($t = -1,86$ ps) in (a) zeigt die ungestörte, in k_{\parallel} symmetrische Gleichgewichtsverteilung der Elektronen im oberen, besetzten Teil des linear dispergierenden topologischen Oberflächenzustands. Die Photoemission im Energiebereich um 150 meV unter ε_F ist Volumenzuständen und dem in diesen eingebetteten Dirac-Punkt zuzuordnen. Aus den Photoemissionsdaten des Dirac-Kegels lassen sich die Fermigeschwindigkeit $v_F = 4,1 \text{ \AA fs}^{-1}$ (in Übereinstimmung mit [8]), der Fermiwellenvektor $k_F = 0,075 \text{ \AA}^{-1}$ und die Energieposition ε_D des Dirac-Punktes in Bezug zur Fermienergie $\varepsilon_F - \varepsilon_D = 200 \text{ meV}$ bestimmen.

Abbildung 6.6 (b) zeigt das Photoemissionsspektrum für eine Verzögerung von $t = 0,14$ ps, kurz nach dem ersten positiven Maximum des elektrischen Feldes des THz-Impulses bei $t = 0$ ps. Das Photoemissionsspektrum zeigt eine deutliche Asymmetrie der Intensität im topologischen Oberflächenzustand nahe der Fermienergie, die direkt einer Änderung der Besetzung der Zustände entspricht. Die Elektronenverteilung ist für negative k_{\parallel} entlang der linearen Dispersion zu höheren Energien und betragsmäßig größeren Parallelimpulsen verschoben. Die Verteilung bei positiven k_{\parallel} ist hingegen zu kleineren Energien und Impulsen verschoben. Die Stärke der Besetzungsänderungen entspricht dabei der gesamten Besetzung des Zustands im entsprechenden Energiebereich und liegt damit mehrere Größenordnungen über den in Kapitel 4 beobachteten Besetzungen nach Anregung mit optischen Impulsen. In Abbildung 6.6 (c) ist für eine Verzögerung von 0,64 ps, entsprechend der Photoemission kurz nach dem Minimum des elektrischen Feldes, ebenfalls eine Asymmetrie im Oberflächenzustand zu erkennen. Diese verläuft im Vergleich zu (b) in die entgegengesetzte Richtung.

Die Verschiebung der Besetzung zu höheren und niedrigeren Werten des Parallelimpulses entspricht einer Beschleunigung der Ladungsträger in ein- und demselben Band, es handelt sich damit um eine Intrabandbeschleunigung. Die beobachtete Umverteilung in Bi_2Te_3 ähnelt auf den ersten Blick der asymmetrischen Besetzung in Sb_2Te_3 nach Anregung mit MIR-Impulsen in Kapitel 5. Die Asymmetrie wird jedoch in beiden Fällen durch vollkommen unterschiedliche physikalische Prozesse erzeugt. Bei Verwendung von MIR-Impulsen führt ein *interband*-artiger, direkter optischer Übergang zur asymmetrischen Verteilung. Die Wechselwirkung der Elektronen mit dem THz-Transienten im Dirac-Kegel führt hingegen zu einer *Intraband*beschleunigung.

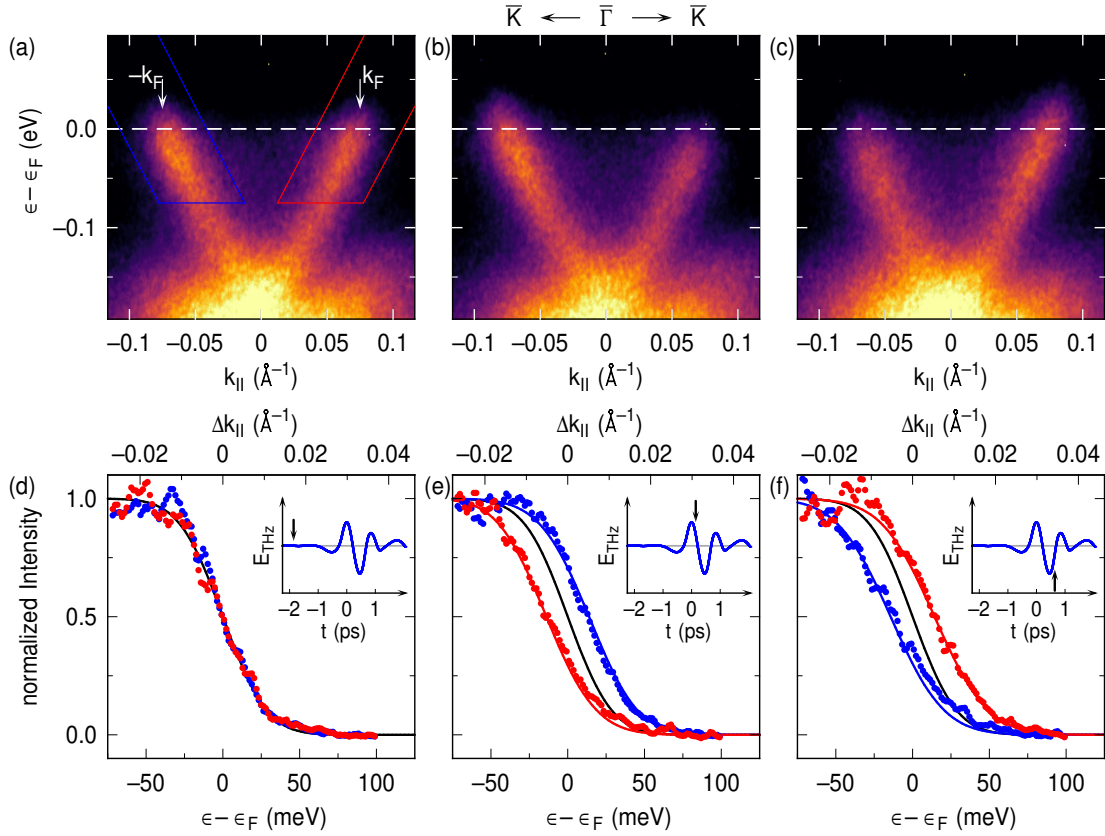


Abb. 6.6: Photoemissionsspektren von Bi_2Te_3 entlang $\bar{\Gamma}\text{-}\bar{K}$ (a) vor Eintreffen des s-polarisierten THz-Impulses ($t = -1,86$ ps), (b) kurz nach dem Maximum ($t = 0,14$ ps) und (c) nach dem Minimum des elektrischen Feldes ($t = 0,64$ ps). Die weiß gestrichelte Linie kennzeichnet die Fermienergie, der Fermiwellenvektor k_F ist mit weißen Pfeilen markiert. (d-f) In $k_{||}$ -Richtung integrierte Photoemissionsintensität der Spektren in (a-c). Die Integrationsregionen sind in (a) gezeigt. Die schwarze Kurve ist eine Fermiverteilung bei 80 K, gefaltet mit der experimentellen Auflösung von 45 meV. Die rote und blaue Linie sind berechnete Verteilungsfunktionen nach Abschnitt 6.2.3 für $\tau_e = \tau_i = 1$ ps. Die Insets zeigen den Feldverlauf des s-polarisierten THz-Transienten, die Verzögerung ist durch einen Pfeil markiert.

Die beobachtete asymmetrische Besetzung des Dirac-Kegels entspricht einem Ungleichgewicht in der Anzahl der sich in entgegengesetzte Richtung bewegendenden Elektronen. Da der Elektronendetektor nur einen Schnitt durch den Impulsraum abbildet, kann aus dem Photoemissionsspektrum nicht direkt auf die Verteilung der Elektronen im gesamten Dirac-Kegel geschlossen werden. Aufgrund der vom externen Feld vorgegebenen Richtung der Beschleunigung der Elektronen muss die Asymmetrie der Verteilung eine einzählige Symmetrie im k -Raum aufweisen. Die im Schnitt beobachtete asymmetrische Verteilung setzt sich daher entlang des Dirac-Kegels fort und ergibt einen in Summe nicht verschwindenden Photostrom im Oberflächenzustand. Eine Herleitung des Zusammenhangs zwischen Verschiebung und Photostrom ist in Anhang B angeführt.

Die detaillierte Auswertung der asymmetrischen Verteilung erfolgt durch Integration der Photoemissionsintensität entlang des Dirac-Kegels. Hierfür kann die Auswertung grundsätzlich sowohl in Energie- als auch in Parallelimpulsrichtung erfolgen. Da die Dispersion entlang des Oberflächenzustands linear verläuft, sind beide Methoden äquivalent. Die im weiteren Verlauf gezeigten Daten sind aufgrund der höheren Auflösung in Energierichtung über k_{\parallel} -Intervalle integriert. In Abbildung 6.6 (a) ist ein typischer Bereich der Integration jeweils für positive und negative k_{\parallel} -Richtungen des Dirac-Kegels gezeigt. Die extrahierten Intensitätsprofile werden vor ihrer weiteren Verwendung automatisiert normiert, um Asymmetrien aus dem Photoemissionsprozess und Intensitätsschwankungen aufgrund des Energie- und Impulsstreakings aus den Daten zu entfernen und somit die Extraktion der Lage der Fermienergie und der Breite der Verteilung zu ermöglichen. Die normierten Intensitätsprofile entsprechen zusätzlich direkt den Verteilungsfunktionen der Zustände.

Die entlang des Dirac-Kegels aufintegrierten Intensitätsverteilungen für die in (a-c) gezeigten Photoemissionsspektren sind in (d-f), eingefärbt als Funktion der Energie $\varepsilon_F - \varepsilon$ und des Parallelimpulses $\Delta k_{\parallel} = k \pm k_F$, gezeigt. Als Referenzwert ist in allen drei Abbildungen eine Fermiverteilung (schwarze Linie) eingezeichnet. Die Temperatur der Verteilung wurde entsprechend der Kühlung der Probe mit flüssigem Stickstoff mit $T = 80\text{ K}$ angenommen. Die Fermiverteilung ist zur Berücksichtigung der experimentellen Auflösung zusätzlich mit einer Gauß-Verteilung mit 45 meV voller Halbwertsbreite gefaltet. Die Auflösung setzt sich aus der Energieauflösung des Detektors und der spektralen Bandbreite der kurzen UV-Impulse zusammen. Das Inset zeigt das elektrische Feld des THz-Transienten und die jeweilige Verzögerung ist mit einem Pfeil markiert. Der Verlauf des elektrischen Feldes ist aus dem Impulsstreaking der Photoemissionsspektren rekonstruiert.

Ein Vergleich der Intensitätsverteilungen ohne externes Feld bei einer Verzögerung $t = -1,86\text{ ps}$ in Abbildung 6.6 (d) für positive (rote Punkte) und negative (blaue Punkte) Werte von k_{\parallel} zeigt eine hervorragende Übereinstimmung der Daten beider Richtungen untereinander und mit der zusätzlich eingezeichneten Fermiverteilung (schwarze Linie). Nach Beschleunigung der Elektronen im elektrischen Feld des THz-Impulses sind die gemessenen Intensitätsverteilungen um bis zu $\approx 25\text{ meV}$ beziehungsweise $0,005\text{ \AA}$ zueinander verschoben (e-f). Die Verschiebung ändert dabei ihre Richtung, wenn das elektrische Feld sein Vorzeichen wechselt. Ein Vergleich mit der Fermiverteilung des ungestörten Systems (schwarze Linie) zeigt eine deutliche Verbreiterung der verschobenen Verteilungsfunktionen.

Abbildung 6.7 zeigt die Intensitätsverteilungen für drei weitere Verzögerungen zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Wie auch in Abbildung 6.6 (d) entsprechen die Intensitätsverteilungen vor dem Eintreffen des THz-Impulses ($t = -1,86\text{ ps}$, (a)) dem Verlauf der theoretischen Fermiverteilung (schwarze Linie). Bei einer Verzögerung von $t = 1,30\text{ ps}$ (b) wurden die Elektronen bereits mehrfach in positive und negative Energierichtung ausgelenkt. Die gemessenen Energieverteilungen sind deutlich verbreitert

und weichen signifikant von der Referenzfermiverteilung ab. Die verbreiterte Verteilung nähert sich für hohe Verzögerungen, wie in (c) $t = 2,55$ ps gezeigt, der ungestörten Fermiverteilung wieder an.

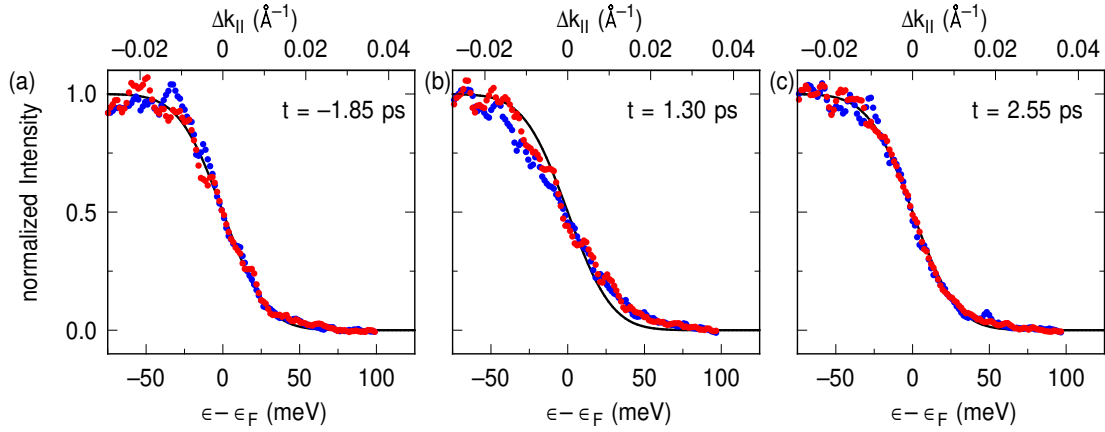


Abb. 6.7: Intensitätsverteilungen entlang des Dirac-Kegels von Bi_2Te_3 für verschiedene Verzögerungen zum s-polarisierten THz-Impuls. Vor der Anregung ($t = -1,86$ ps) (a), nach mehrfachem Beschleunigen ($t = 1,30$ ps) (b) und ≈ 1 ps nach Abklingen des THz-Impulses ($t = 2,55$ ps). Die schwarze Kurve entspricht einer Fermiverteilung bei 80 K gefaltet mit der experimentellen Auflösung.

Die Quantifizierung der Verschiebung der Elektronen bei positiven und negativen Parallelimpuls erfolgt über die Integration der Verteilungsfunktionen auf Basis der normierten Intensitätsverteilungen. Da die gemessenen k_{\parallel} -Verschiebungen Δk klein gegenüber dem Fermiwellenvektor sind, wird die Anzahl der Zustände entlang des Dirac-Kegels im Bereich der Verschiebung als konstant angenommen. Die Integration der Verteilungsfunktion ermöglicht eine einfache Berücksichtigung der beobachteten Verbreiterung der Verteilungen. Die Differenz $2\Delta\epsilon$ in meV ist ein Maß für die Differenz der Teilchenzahl im Dirac-Kegel für k_{\parallel} und wird bestimmt, indem die beiden normierten Verteilungen in einem festen Energiebereich aufintegriert und die Integrale anschließend voneinander subtrahiert werden. Aufgrund der linearen Dispersion des topologischen Oberflächenzustands kann aus der Verschiebung der Verteilung $\Delta\epsilon$ bezüglich der Energie über $\epsilon = \hbar v_F k$ die Verschiebung Δk in Parallelimpulsrichtung berechnet werden.

Die Aufspaltung der Verteilungsfunktionen ist in Abbildung 6.8 als Funktion der Verzögerung t zwischen dem s-polarisierten THz-Impuls und dem Abfrageimpuls mit roten Punkten eingezeichnet. Die maximale Aufspaltung der Verteilungsfunktionen beträgt $2\Delta\epsilon = 27$ meV respektive $\Delta k = \Delta\epsilon/(\hbar v_F) = 0,005 \text{ \AA}$ bei einer maximalen Feldstärke von $E_{\parallel} = 2,8 \pm 0,5 \text{ kV/cm}$. Die Verschiebung ist zusätzlich zur Auftragung als Δk_{\parallel} auch als die aus der Ladungsträgerverschiebung resultierende Stromdichte j aufgetragen. Über $j = -e v_F k_F \frac{\Delta k}{4\pi}$ kann der Maximalwert der Stromdichte

$j \approx 2,0 \text{ A/cm}$ bestimmt werden. Die Herleitung der Berechnung der Stromdichte aus der Verschiebung der Verteilungsfunktion ist in Anhang B zusammengefasst.

Der Photostrom fließt ausschließlich im Oberflächenzustand und damit in einer nur wenige Atomlagen dicken Schicht an der Oberfläche. Unter der Annahme, dass der Oberflächenzustand in der ersten Quintupellage mit einer Dicke von 1 nm lokalisiert ist, erreicht die Volumenstromdichte Werte von bis zu $2 \times 10^7 \text{ A cm}^{-2}$ oder 4 nA pro Oberflächenatom. Der Strom ändert dabei in Abhängigkeit der Verzögerung neben der Amplitude insbesondere auch die Richtung.

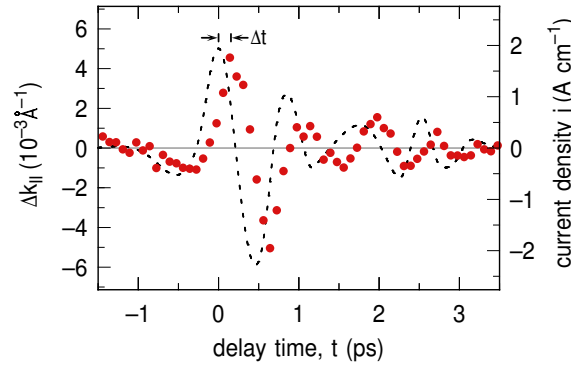


Abb. 6.8: Die Aufspaltung $\Delta k_{||}$ und die daraus berechnete Stromdichte j (rote Punkte) als Funktion der Verzögerung zwischen s-polarisiertem THz-Impuls und Abfrageimpuls für die in Abbildung 6.6 gezeigten Photoemissionsspektren. Das rekonstruierte elektrische Feld parallel zur Oberfläche (gestrichelte Linie) ist aus dem Impulsstreaking berechnet. Der maximale Strom ist um $\Delta t = 0,15 \text{ ps}$ zum Maximum des Feldes verzögert.

Zusätzlich zur gemessenen Verschiebung der Verteilungen ist der Feldtransient des anregenden THz-Impulses als gestrichelte Linie normiert in die Abbildung 6.8 eingezeichnet. Auf den ersten Blick erscheint die Stromdichte den Verlauf des elektrischen Feldes mit zusätzlicher zeitlicher Verzögerung abzubilden. Bei genauerer Betrachtung zeigt sich, dass sowohl die Verschiebung als auch die Amplituden der einzelnen Halbzyklen Unterschiede zwischen Feld und Verschiebung aufweisen. Die maximale Stromdichte ist um $\Delta t = 0,15 \text{ ps}$ zum Maximum des elektrischen Feldes bei $t = 0 \text{ ps}$ verzögert. Die zeitliche Verzögerung zwischen den Extrema von Feld und Stromdichte ist proportional zur Breite der einzelnen Halbzyklen des elektrischen Feldes. Die Stromdichte $j(t)$ steigt in der ansteigenden Flanke ($t < 0 \text{ ps}$) des ersten positiven Feldhalbzyklus monoton an. Während $E(t)$ für $t > 0 \text{ ps}$ abnimmt, steigt $j(t)$ weiterhin kontinuierlich monoton an und erreicht die maximale Stromdichte bei $t = 0,15 \text{ ps}$ kurz vor dem Nulldurchgang und dem damit verbundenen Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes. Dieses bei nahezu allen Halbzyklen und unabhängig von der Richtung des Feldes zu beobachtende Verhalten entspricht einem 90° Phasenversatz zwischen dem elektrischem Feld und der Stromdichte. Der gemessene Strom scheint damit nur wenig gestreut zu werden und der Strom verhält sich nahezu ballistisch. Die Streu-

zeiten der Elektronen müssten sich dafür, bei den hier verwendeten Frequenzen der THz-Strahlung, im Pikosekundenbereich bewegen. In Abschnitt 6.2.3 wird eine Simulation der Verschiebung der Elektronen im Dirac-Kegel mit anschließender Extraktion der Streuzeiten diese Vorhersage bestätigen können.

Der gemessene Photostrom in Abbildung 6.8 zeigt eine hohe Korrelation zum parallelen elektrischen Feld vor der Probe, insbesondere für die ersten, intensiven Halbzyklen. Für rein p-polarisierte THz-Impulse wurde keine Intrabandbeschleunigung der symmetrischen Grundzustandsverteilungen mit der damit einhergehenden Verschiebung der Verteilungsfunktion beobachtet. Um zu zeigen, dass der beobachtete Photostrom allein von der s-polarisierten Komponente des THz-Impulses erzeugt wird, sind in einem zusätzlichen Experiment die s- und p-polarisierten Komponenten unabhängig voneinander variiert worden. Hierzu wurde in den Strahlengang der bereits überlappenden THz- und UV-Impulse eine zusätzliche Reflektion eingefügt (siehe Abschnitt 3.3). Hierdurch wird das Vorzeichen des elektrischen (und magnetischen) Feldes der s-polarisierten Komponente gewechselt, die p-polarisierte Komponente bleibt hingegen unverändert. Sollte eine Beeinflussung der Stromdichte durch die p-polarisierten Feldkomponenten messbar sein, würde sich dies in den experimentellen Ergebnissen als deutlicher Unterschied im zeitlichen Verlauf der Stromdichte zeigen.

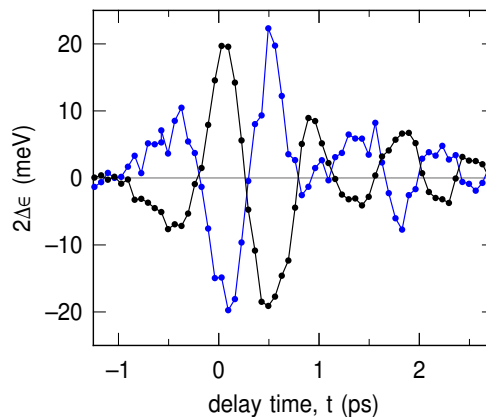


Abb. 6.9: Energieaufspaltung $2\Delta\epsilon$ zwischen den Verteilungsfunktionen bei positivem und negativem Parallelimpuls als Funktion der Verzögerung zwischen s-polarisiertem THz-Impuls und UV-Abfrageimpuls (schwarze Linie). Nach Vorzeichenwechsel des elektrischen Feldes des THz-Impulses ist die gemessene Aufspaltung ebenfalls invertiert (blaue Linie).

In Abbildung 6.9 ist die Energieaufspaltung $2\Delta\epsilon$ zwischen den Verteilungsfunktionen bei positivem und negativem Parallelimpuls als Funktion der Verzögerung t zwischen THz-Anregungsimpuls und UV-Abfrageimpuls aufgetragen. Die Aufspaltung ohne zusätzliche Reflektion und damit ohne Wechsel des Vorzeichens (schwarze Punkte) ist qualitativ identisch zu den Ergebnissen in Abbildung 6.8. Die Verschiebung mit invertiertem Feld (blaue Punkte) verläuft im Vergleich dazu in die entgegengesetzte

Richtung. Beide Kurven sind abgesehen von ihrem Vorzeichen im Rahmen der experimentellen Unsicherheiten über große Bereiche der Verzögerung t identisch. Insbesondere die Zeitpunkte der einzelnen Extrema und Nulldurchgänge ist nahezu gleich. Der reine Vorzeichenwechsel der Aufspaltung zeigt damit eindeutig, dass die gemessene Intrabandbeschleunigung und der daraus resultierende Photostrom eine alleinige Konsequenz der Anregung mit s-polarisierten THz-Impulsen ist. Aufgrund der geringen Abweichung der Verschiebungen zwischen dem elektrischen Feld mit und ohne Vorzeichenwechsel kann eine Beeinflussung der p-polarisierten Komponenten des THz-Impulses auf die Verschiebung der Elektronen als vernachlässigbar gering angesehen werden und es ist gerechtfertigt, diese in der weiteren Betrachtung zu ignorieren.

Die Auswertungen in diesem Abschnitt konnten zeigen, dass die Intrabandbeschleunigung der Elektronen des Dirac-Kegels durch die Wechselwirkung mit s-polarisierten THz-Impulsen zur Erzeugung von Photoströmen im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 führt. Mit Hilfe zeitaufgelöster Photoemission konnte erstmalig die Verschiebung der Fermienergie und der gesamten Fermikugel direkt im k-Raum beobachtet werden. Die beobachtete Verschiebung entspricht mit $0,005 \text{ \AA}$ ungefähr 7% des Fermiwellenvektors k_F . Bei Feldstärken von $E_{\parallel} = 2,8 \pm 0,5 \text{ kV/cm}$ erreicht die ballistische Stromdichte Werte von $j \approx 2,0 \text{ A/cm}$. Durch die Nutzung der tr-ARPES ist es möglich, die signifikante Verschiebung und Verbreiterung der Gleichgewichtsverteilungsfunktionen zeitaufgelöst direkt in der Bandstruktur des Materials zu beobachten.

6.2.2 Quantitative Bestimmung s-polarisierter Felder

Für die Interpretation der im vorherigen Abschnitt beobachteten Intrabandbeschleunigung im Dirac-Kegel ist der genaue zeitlich Verlauf des elektrischen Feldes in der Oberfläche notwendig. In diesem Abschnitt wird das elektrische Feld für die im letzten Abschnitt bereits ausführlich diskutierte Messreihe aus der experimentell bestimmten zeitlichen Änderung Δk_{streak} des Parallelimpulses k_{\parallel} bestimmt. In den betrachteten Spektren sind die Effekte der Intrabandbeschleunigung, erkennbar an der Verschiebung der Verteilungsfunktionen entlang der linearen Dispersion, und der Beschleunigung im Vakuum, mit einer Verschiebung des gesamten Spektrum in Impulsrichtung, überlagert.

Abbildung 6.10 zeigt das Photoemissionsspektrum von Bi_2Te_3 für verschiedene Verzögerungen t . Zur Verdeutlichung der Verschiebung in Parallelimpulsrichtung wurde die Verschiebung in Energierichtung aus den Daten entfernt. Für eine Verzögerung von $t = -1.86 \text{ ps}$ in (a) ist das Photoemissionsspektrum in Energie- und Impulsrichtung unverschoben und der linear dispergierende Dirac-Kegel liegt symmetrisch um $k_{\parallel} = 0 \text{ \AA}^{-1}$. Die rote und blaue Linie markieren den Verlauf der linearen Dispersion und liegen symmetrisch in den Photoemissionsdaten. Bei einer Verzögerung $t = 0,14 \text{ ps}$ in (b) sind die Photoelektronen sowohl durch die Intrabandbeschleunigung entlang der linearen Dispersion, als auch aufgrund der Beschleunigung im parallelen

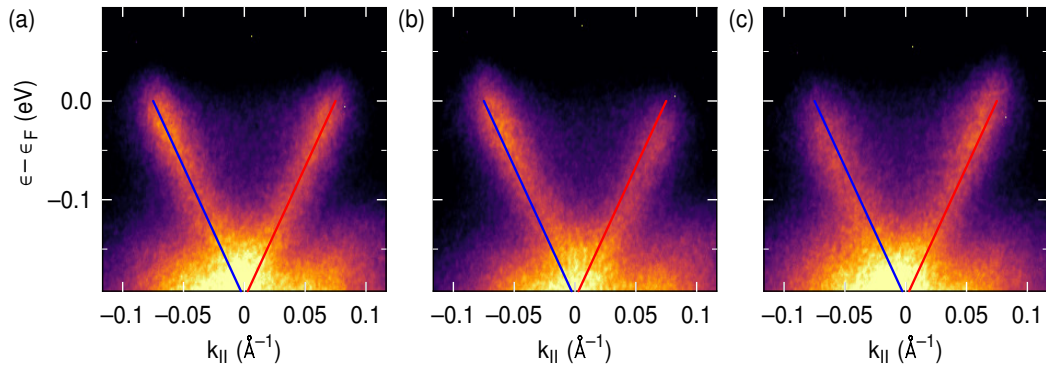


Abb. 6.10: Photoemissionsspektren von Bi_2Te_3 für verschiedene Verzögerungen t zwischen THz- und UV-Impuls. Die Energieverschiebung ist aus den Daten herausgerechnet. (a) Für $t = -1.86$ ps ist die Verteilung unverschoben. Die rote und blaue Linie verläuft entlang des linear dispergierenden Dirac-Kegels. (b) Für $t = 0.14$ ps ist zusätzlich zur Intrabandbeschleunigung um ε_F eine Verschiebung des gesamten Spektrums in positive Parallelimpulsrichtung $+k_{||}$ zu erkennen. Die rote und blaue Linie entspricht weiterhin dem Verlauf des Dirac-Kegels in (a). (c) Für eine Verzögerung von $t = 0.64$ ps ist das Spektrum in die entgegengesetzte, $-k_{||}$ -Richtung verschoben.

Feld vor der Oberfläche gleichmäßig in Richtung positiver Parallelimpulse verschoben. Im Vergleich $t = -1.86$ ps (rote und blaue Linie) ist der gesamte Oberflächenzustand um $6,3 \cdot 10^{-3} \text{Å}^{-1}$ verschoben, erkennbar an der im Vergleich zu den eingezeichneten Linien nach rechts verlagerten Intensität im Spektrum. Die Amplitude, beziehungsweise die Richtung der Verschiebung, ändert sich als Funktion der Verzögerung und ist in (c) für $t = 0.64$ ps entgegengesetzt zu (b). Die Photoelektronen sind über den gesamten Bereich des Dirac-Kegels um $-5,4 \cdot 10^{-3} \text{Å}^{-1}$ verschoben. Die Abweichung zur Lage der Verteilung ohne Beschleunigung im Feld (rote und blaue Linie) ist an der Verlagerung der Photoemissionsintensität nach links zu erkennen. Die Verschiebung kann nach der in Abschnitt 6.1.1 vorgestellten Methode numerisch ausgewertet werden und anschließend zur Berechnung des elektrischen Feldes parallel zur Oberfläche genutzt werden.

Die Parallelimpulsänderung Δk_{streak} ist in Abbildung 6.11 (a) in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen s-polarisiertem THz-Anregungsimpuls und Abfrageimpuls gezeigt. Die Verschiebungen des Photoemissionsspektrums in Parallelimpulsrichtung liegen im Bereich weniger 10^{-3}Å^{-1} und entsprechen wenigen Prozent des gesamten Abbildungsbereiches des Elektronendetektors. Die geringe Änderung von $k_{||}$ entspricht einer Verschiebung um nur wenige Pixel auf dem Detektor, dies führt zur erkennbaren Körnigkeit der Auswertung. Die Rekonstruktion des elektrischen Feldes E_{THz} aus den Photoemissionsdaten erfolgt nach Gleichung 6.11 und erzeugt den in Abbildung 6.11 (b) dargestellten Verlauf der Feldstärke der parallel zur Oberfläche polarisierten stehenden Welle vor der Probe (schwarze Punkte). Bei maximaler Feldamplitude beträgt

die transiente Änderung des Parallelimpulses $0,043 \pm 0,009 \text{ \AA}^{-1}\text{ps}^{-1}$. Die maximale Feldamplitude der parallelen Komponente der stehenden Welle vor der Oberfläche beträgt damit $2,8 \pm 0,5 \text{ kV cm}^{-1}$.

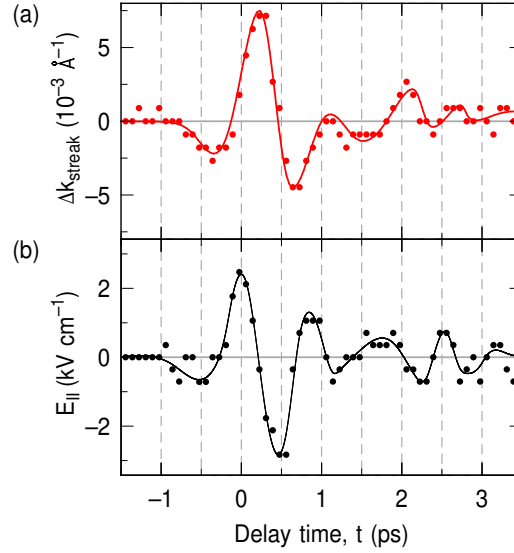


Abb. 6.11: (a) Verschiebung der Photoemissionsspektren von Bi_2Te_3 in k_{\parallel} -Richtung nach Anregung mit s-polarisiertem THz-Impuls als Funktion der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. (b) Die Feldstärke der stehenden Welle vor der Oberfläche, berechnet aus (a) (schwarze Punkte), und der daraus rekonstruierte THz-Transient (schwarze Linie).

Eine Interpolation des elektrischen Feldes durch einen kubischen Spline, analog zu Abschnitt 6.1.5, liefert den vollständigen transienten Verlauf des elektrischen Feldes. Die Verwendung eines Polynomzuges glättet dabei effektiv die aus der Kameraauflösung stammende Körnigkeit der Daten und erzeugt einen Feldverlauf, der qualitativ gleichwertig zur Rekonstruktion des Feldes aus Daten p-polarisierter Messungen ist. Der im Vergleich zur Zyklendauer kleine zeitliche Abstand der einzelnen Messpunkte ergibt im Zusammenspiel mit der durchgeführten Interpolation eine hohe Genauigkeit der Phasenlage des rekonstruierten elektrischen Feldes.

Vergleicht man in Abbildung 6.12 die aus Energie- und k_{\parallel} -Verschiebung nach Gleichung 6.9 und 6.11 berechneten Felder einer einzelnen Messreihe, so werden deutliche qualitative Unterschiede der rekonstruierten Transienten sichtbar. Während das aus Δk_{streak} berechnete Feld (blaue Punkte) ausschließlich die Wechselwirkung mit der zur Oberfläche parallelen s-Komponente des eingestrahlten Feldes abbildet, ist die Energieänderung die Summe aus Beschleunigung sowohl im senkrechten als auch im parallelen Feld vor der Probe. Die Feldkomponenten senkrecht zur Oberfläche existieren aufgrund einer kleinen p-polarisierten Komponente im eigentlich s-polarisierten THz-Impuls, die experimentell nahezu nicht zu verhindern ist. Aufgrund der Fresnelfaktoren wird der Beitrag der p-Komponente in der Reflektion überproportional

verstärkt. Das aus der Energieverschiebung rekonstruierte Feld ist daher eine Überlagerung von s- und p-polarisierter Komponente, die nicht voneinander getrennt werden können. Damit ist praktisch nur aus der Messung und Auswertung der Verschiebung in Parallelimpulsrichtung die Rekonstruktion des s-polarisierten THz-Impulses möglich.

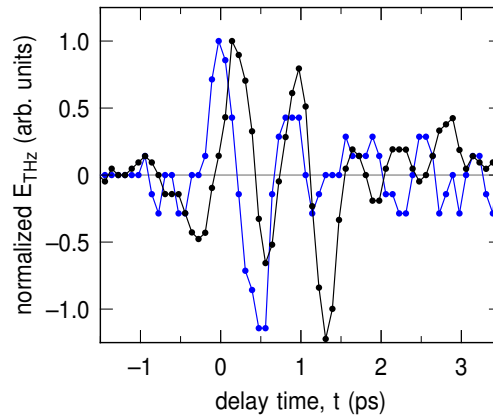


Abb. 6.12: Vergleich der normierten rekonstruierten Feldstärke aus der Verschiebung in k_{\parallel} -Richtung (blaue Punkte) nach Wechselwirkung mit dem s-polarisierten THz-Feld und in Energierichtung (schwarze Punkte) infolge der Wechselwirkung im überlagerten s- und p-polarisierten Feld.

Zusammengefasst erlaubt die Auswertung der Parallelimpulsverschiebung Δk_{streak} der Photoemissionsspektren trotz der Überlagerung mit den Effekten der Intrabandbeschleunigung eine direkte Bestimmung der Amplitude und Phase des Feldtransienten parallel zur Oberfläche und in Richtung des Eingangsspaltes des Detektors. Das ohne Kenntnis der Reflektionskoeffizienten des Materials oder des eingestrahlten elektrischen Feldes und ohne zusätzliche Näherungen rekonstruierte elektrische Feld kann damit für die weitere Auswertung und Diskussion im nächsten Abschnitt verwendet werden. Aufgrund der Kontinuität der parallelen Feldkomponente sind das hier bestimmte parallele Feld vor der Probe und das parallele Feld in der Probe identisch.

6.2.3 Simulation der Boltzmann-Gleichung und Bestimmung der Streuzeiten

Die Analyse der Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ in Abschnitt 6.2.1 belegt einen durch das externe elektrische Feld eines s-polarisierten THz-Impulses getriebenen Strom im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 . Die Verbreiterung der Verteilungsfunktion und die anschließende Rückkehr zum Ausgangszustand zeigen, dass elastische und inelastische Streuprozesse eine wichtige Rolle in der Dynamik des Photostroms spielen. Für das Verständnis des gesamten Prozesses der Erzeugung und Relaxation

des Stroms ist eine Beschreibung der Elektronenverteilung als Funktion des externen Feldes und unter Berücksichtigung der Streuprozesse notwendig.

Im folgenden Abschnitt soll aus der in Abschnitt 2.3.2 auf die Intrabandbeschleunigung im topologischen Oberflächenzustand angepasste Boltzmann-Gleichung

$$\frac{\partial f_{\pm k}(k,t)}{\partial t} + \frac{e}{\hbar} E(t) \nabla_k f_{\pm k}(k,t) = \frac{1}{\tau_e} (-f_{\pm k}(k,t) + f_{\mp k}(k,t)) - \frac{f_{\pm k}(k,t) - f^0}{\tau_i}$$

die zeitabhängigen Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}(t)$ berechnet und hinsichtlich des Einflusses der elastischen (τ_e) und inelastischen (τ_i) Streuzeiten sowie des elektrischen Feldes untersucht werden. Im zweiten Teil sollen aus einem Vergleich zwischen Simulation und den experimentellen Ergebnissen sowohl der Mechanismus der Erzeugung des Photostroms verifiziert als auch die Streuzeiten τ_e und τ_i im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 bestimmt werden.

Einfluss der Streuzeiten auf die simulierte Verteilungsfunktion

Die aus der Boltzmann-Gleichung berechneten Verteilungsfunktionen zeigen als Reaktion auf das eingestrahlte elektrische Feld eine deutliche Energieverschiebung, die für die zwei simulierten Verteilungen $f_{\pm k}$ in entgegengesetzte Richtungen verläuft (Abbildung 6.13 (b,c)) und aus der sich analog zum Experiment eine Stromdichte bestimmen lässt. Je nach Wahl der einzelnen Streuzeiten sind die simulierten Verteilungen nach der Anregung zusätzlich stark verbreitert (Abbildung 6.13 (c,g)). Die Boltzmann-Gleichung ist damit grundsätzlich in der Lage, alle experimentell beobachteten Veränderungen der Verteilungsfunktionen wiederzugeben.

Abbildung 6.13 zeigt die Ergebnisse der numerischen Integration der Boltzmann-Gleichung (siehe Anhang C) für verschiedene Werte der elastischen und inelastischen Streuzeit τ_e und τ_i . Der in der Simulation genutzte Transient des elektrischen Feldes ist aus dem Impulsstreaking der experimentellen Photoemissionsdaten extrahiert und wurde bereits in Abbildung 6.8 diskutiert. Die Verteilungen sind in diesem Teilabschnitt ohne die experimentelle Verbreiterung von 45 meV gezeigt, um kleine Unterschiede in den Verteilungsfunktionen nicht zu verbergen.

Schränkt man die möglichen Streukanäle auf ausschließlich inelastische Streuprozesse (a-d) ein und wählt für die Streuzeit und Feldstärke mit $\tau_i = 1$ ps und $2,5 \text{ kV/cm}^{-1}$ Werte nahe den experimentellen Parametern, so ergibt sich aus der Simulation eine Stromdichte j (rote Linie) im Bereich von $\pm 2,3 \text{ A/cm}$, in der Größenordnung des experimentell bestimmten Wertes. Ein Vergleich mit dem ebenfalls in (a) gezeigten elektrischen Feld (gestrichelte schwarze Linie) zeigt, dass die Stromdichte bezüglich des elektrischen Feldes signifikant verzögert ist. Der Grund dafür ist, dass mit der Streuzeit auf der Zeitskala eines Halbzylus die Beschleunigung der Elektronen nicht nach der maximalen Amplitude, sondern erst nach Umkehr des Feldes ihr Vorzeichen wechselt.

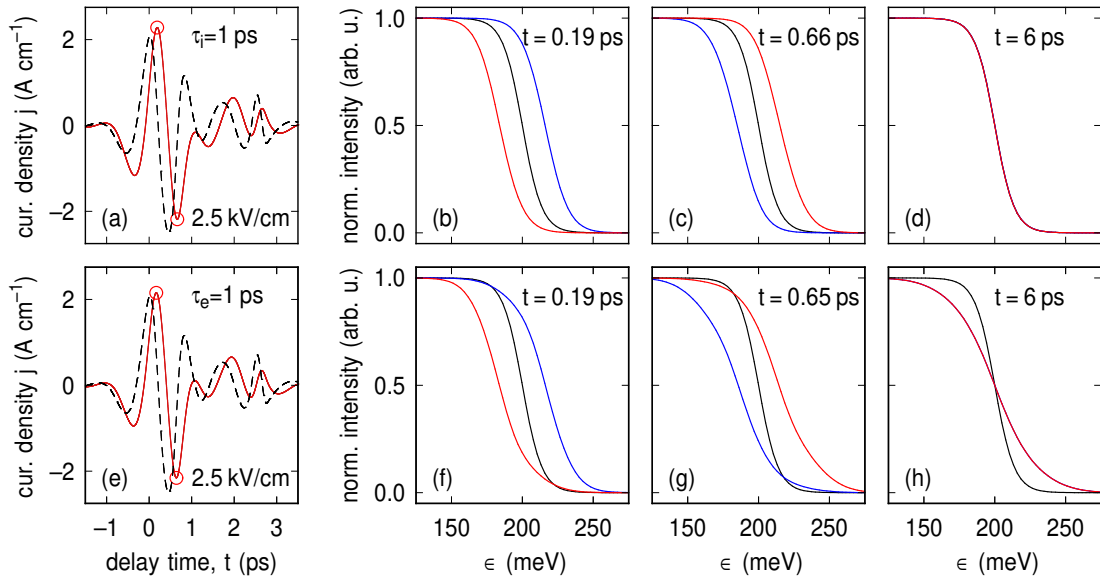


Abb. 6.13: (a) Die Stromdichte (rote Linie) aus der numerisch integrierten Boltzmann-Gleichung mit rein inelastischer Streuung ($\tau_i = 1$ ps) als Funktion der Verzögerung zwischen THz- und Abfrageimpuls für ein elektrisches Feld (schwarz gestrichelte Linie) mit 2.5 kV cm^{-1} Amplitude. Die Extrema der Stromdichte sind mit Kreisen gekennzeichnet. (b-d) Die Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ (rote / blaue Linie) zum Zeitpunkt der maximalen (minimalen) Stromdichte und für eine Verzögerung von 6 ps mit der Gleichgewichtsverteilung (schwarze Linie) als Referenz. Die Verteilungen sind ohne die experimentelle Verbreiterung des Photoemissionsexperimentes dargestellt. (e-h) Abbildungen wie (a-d) mit ausschließlich elastischer Streuung ($\tau_e = 1$ ps).

Im Falle klassischer Drude-artiger, von Streuprozessen dominierter Leitung von Ladungsträgern skaliert der Strom im Gleichgewicht für kleine Verschiebungen und kurze Streuzeiten mit der Amplitude des angelegten Feldes. Vergleicht man die berechneten Amplituden der lokalen Extrema der Stromdichte mit der maximalen Amplitude des zugehörigen Halbzyklus des elektrischen Feldes (zum Beispiel für $t = -0,5; 0,2$ und $0,7$ ps), so sind diese nicht direkt proportional, sondern proportional zum Integral über den Halbzyklus. Die Kombination aus der Verzögerung des maximalen Stroms und dem integrativen Charakter zeigen klar, dass es sich im Wesentlichen um einen ballistischen Stromtransport handelt.

Die Simulation der Boltzmann-Gleichung wählt den Grundzustand des Systems in Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen als eine Fermi-Dirac-Verteilung der Elektronen bei einer Temperatur von 80 K mit identischer Lage der Fermienergie im gesamten Dirac-Kegel. Betrachtet man die Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ (rote/blau Linie) zum Zeitpunkt der maximalen Stromdichte j ($t = 0,19$ ps (b)), so sind diese bezüglich der ungestörten Fermiverteilung signifikant zu höherer oder niedrigerer Energie verschoben und reproduzieren in dieser Hinsicht die experimentelle

Beobachtung. Die Verschiebung ändert zu anderen Verzögerungen mit umgekehrtem Feld ihre Richtung (c), die resultierende Stromdichte ändert entsprechend ihr Vorzeichen. Die Verteilungsfunktionen zeigen bei rein inelastischer Streuung neben der deutlichen Verschiebung zusätzliche Abweichungen im Vergleich zur Form der ungestörten Fermi-Dirac-Verteilung (schwarze Linie). Für größere Werte der Verzögerung (c), bei denen die Verteilung bereits mehrfach sowohl in positive als auch in negative Richtung verschoben wurde, ist eine Verbreiterung über den gesamten Energiebereich der Verteilungsfunktion sichtbar. Für hohe Verzögerungen (d), nachdem das elektrische Feld des THz-Impulses vollständig mit den Elektronen im Dirac-Kegel wechselwirken konnte und das System zusätzliche Zeit zur Relaxation hatte, ist die Verteilungsfunktion im topologischen Oberflächenzustand wieder in den Grundzustand relaxiert.

Untersucht man die Resultate rein elastischer Streuungen (e-h) mit $\tau_e = 1$ ps, so wird die vormals nicht vorhandene Streuung der Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ untereinander zum alleinigen Relaxationskanal. Wie auch im Fall ausschließlich inelastischer Streuung zeigt sich auch bei rein elastischer Streuung eine Verschiebung der Verteilungsfunktionen als Reaktion auf die Beschleunigung im elektrischen Feld. Eine Berechnung der Stromdichte aus den zueinander verschobenen Verteilungsfunktionen ergibt einen zum Feld verzögerten Verlauf mit Amplituden von $\approx 2,2$ A/cm bei Feldstärken von $2,5$ kV/cm $^{-1}$. Die Stromdichte verhält sich bezüglich des anregenden elektrischen Feldes qualitativ genau wie im Falle der rein inelastischen Streuung in (a). Die genauen Zeitpunkte maximaler und minimaler Stromdichte unterscheiden sich um wenige 10 fs. Die geringen Unterschiede in den Zeitpunkten der minimalen und maximalen Stromdichte zeigen somit, dass bei konstanter Streuzeit die Verzögerung zwischen Stromdichte und Feld nur wenig von der konkreten Wahl zwischen elastischer oder inelastischer Streuung abhängt.

Die Verteilungsfunktionen sind bei rein elastischer Streuung bereits für kleine Verzögerungen (f) sowohl deutlich verschoben als auch im Vergleich zur Fermi-Dirac-Verteilung signifikant verbreitert. Die Aufweitung der Verteilungen ist eine direkte Konsequenz der Streuung von Elektronen aus der zu höheren Energien verschobenen Verteilung in die unbesetzten Zustände der gegenüberliegenden Verteilung. Da kein inelastischer Streukanal existiert, ist im verwendeten Modell keine Relaxation zurück in den Grundzustand möglich. Dies führt dazu, dass die Elektronen im Dirac-Kegel stark aufgeheizt werden und die Verteilungsfunktion entsprechend stark verbreitert wird. Ein Vergleich mit der Verteilungsfunktion des Grundzustands zeigt, dass schon nach wenigen vollständigen Auslenkungen (g) die Verteilung so stark verbreitert ist, dass selbst die zu höheren Energien verschobene Verteilung (rote Linie) in bestimmten Energiebereichen unter der Grundzustandsverteilung liegt. Für rein inelastische Streuung (a-d) ist dies nicht zu beobachten. Da bei rein elastischer Streuung keine Möglichkeit zur Energiedissipation vorhanden ist, kann die verbreiterte, aufgeheizte Elektronenverteilung nicht in die Grundzustandsverteilung relaxieren. Dies führt dazu, dass selbst für große Verzögerungen (6 ps (h)) die Verteilung signifikant von der

Fermi-Dirac-Verteilung bei 80 K abweicht. Dieses Verhalten wird in den experimentellen Daten nicht beobachtet.

Da ausschließlich inelastische Streuprozesse die experimentell beobachtete Verbreiterung der Verteilungsfunktionen nicht erzeugen können und rein elastische Streuprozesse die Verteilungsfunktionen, entgegen der experimentellen Beobachtung (siehe Abbildung 6.7), für hohe Verzögerungen nicht relaxieren, müssen für die Beschreibung der experimentellen Ergebnisse elastische und inelastische Streuprozesse kombiniert werden. Durch die Wahl des Verhältnisses der Streuzeiten kann dabei die experimentell beobachtete Verbreiterung abgebildet werden. Das Verhältnis der Streuzeiten zur Stärke des elektrischen Feldes hat neben der Amplitude der Stromdichte auch einen starken Einfluss auf die beobachtete Verzögerung zwischen dem elektrischen Feld und der Stromdichte.

Die Stärke der Verschiebungen der Verteilungsfunktionen in Abbildung 6.13 (a-h) ist aufgrund der experimentell limitierten maximalen Feldstärke typischerweise in der Größenordnung der thermischen Verbreiterung der Verteilung selbst. Die diskutierten Verteilungsfunktionen ähneln dabei in ihrem grundsätzlichen Verlauf weiterhin der klassischen Fermi-Dirac-Verteilung. Im Rahmen der Simulation des Photostroms ist es möglich, diese experimentelle Begrenzung der Feldstärke zu umgehen.

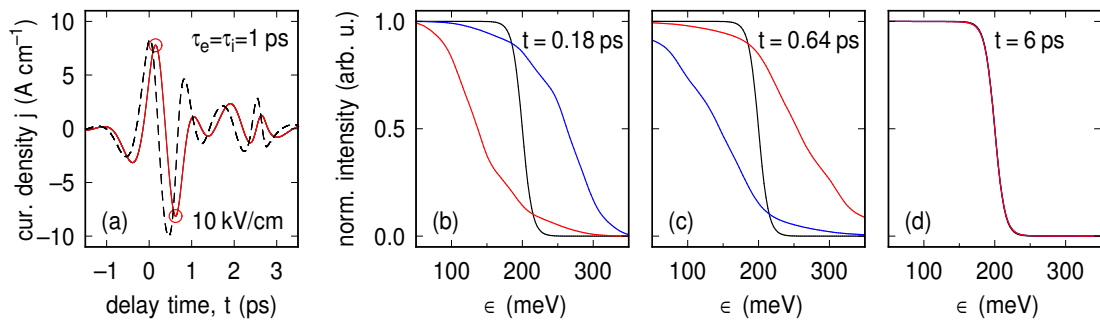


Abb. 6.14: (a) Die Stromdichte (rote Linie) aus der numerisch integrierten Boltzmann-Gleichung mit elastischer und inelastischer Streuung ($\tau_e = \tau_i = 1$ ps) als Funktion der Verzögerung zwischen THz- und Abfrageimpuls für ein elektrisches Feld (schwarz gestrichelte Linie) mit 10 kV cm^{-1} Amplitude. Die Extrema der Stromdichte sind mit Kreisen gekennzeichnet. (b-d) Die Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ (rote / blaue Linie) zum Zeitpunkt der maximalen (minimalen) Stromdichte und für eine Verzögerung von 6 ps. Die Gleichgewichtsverteilung ist als Referenz ebenfalls eingezeichnet (schwarze Linie) und alle Verteilungen sind ohne die experimentelle Verbreiterung des Photoemissionsexperimentes dargestellt.

In Abbildung 6.14 (a) ist die Verschiebung der Verteilungsfunktionen und die daraus resultierende Stromdichte für eine im Vergleich zu Abbildung 6.13 um den Faktor vier höhere Feldstärke des elektrischen Feldes von 10 kV cm^{-1} unter Berücksichtigung von elastischen und inelastischen Streuprozessen ($\tau_e = \tau_i = 1$ ps) gezeigt. Aufgrund der hohen Feldstärke erreicht die Stromdichte Werte von bis zu $7,8 \text{ A/cm}$. Das ballistische Verhalten mit der deutlichen Verzögerung zum elektrischen Feld ist in (a)

auch bei hohen Feldern zu erkennen und ist qualitativ nicht von den Beobachtungen bei niedrigeren Feldern zu unterscheiden. Die Form der Verteilungsfunktionen zeigt im Vergleich zu kleineren Feldstärken eine sehr deutliche Veränderung. Bereits für eine Verzögerung von 0,18 ps, entsprechend der Wechselwirkung mit nur einem intensiven Halbzyklus, sind die Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ durch stufenartige Änderungen der Steigung gekennzeichnet. Zusätzlich sind sie bezüglich der Energie stark verbreitert und asymmetrisch. Die Verteilungsfunktionen werden zu höheren Verzögerungen in (c) wieder symmetrischer und die verschobenen Verteilungsfunktionen gleichen sich auch gegenseitig wieder deutlich stärker, sind aber weiterhin keine Fermi-Dirac-Verteilungen. Erst zu großen Verzögerungen wie in (d) relaxieren die Verteilungen aufgrund der inelastischen Streuung zurück zu einer Fermi-Dirac-Verteilung.

Die Ergebnisse der Simulation mit hohen Feldstärken legen nahe, dass sich durch eine einfache Erhöhung der elektrischen Feldstärke die Elektronen im topologischen Oberflächenzustand aus der Fermi-Dirac-Statistik des Grundzustands in einen Zustand mit signifikant veränderten Verteilungsfunktionen bringen lassen. Eine Untersuchung der Elektronendynamik unter diesen Bedingungen ermöglicht es Erkenntnisse in einem extremen Nichtgleichgewichtszustand zu sammeln.

Bestimmung der Streuzeiten in Bi_2Te_3

Die Bestimmung der elastischen τ_e und inelastischen τ_i Streuzeiten der Elektronen im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 erfolgt in diesem Abschnitt durch einen Vergleich zwischen experimentellen Daten und den Ergebnissen der Simulation der Boltzmann-Gleichung. Es zeigt sich dabei, dass für die elastische und inelastische Streuzeit eine genaue Untergrenze, aber keine sehr genaue Obergrenze ermittelt werden kann. Da die ermittelten Streuzeiten nahe bei der inversen Oszillationsfrequenz des THz-Impulses liegen, hängt die Größe und der zeitliche Verlauf der Stromdichte nur noch schwach von den Streuzeiten ab. Eine genaue Bestimmung einer oberen Grenze stellt daher erheblich höhere Anforderung an die Genauigkeit der Messdaten als die Bestimmung einer unteren Grenze. Eine zusätzliche Schwierigkeit besteht darin, dass sich die elastischen und inelastischen Streuprozesse gegenseitig beeinflussen und beide für erzielbaren Strom im Oberflächenzustand gleichwertig sind (vergleiche Abbildung 6.13).

Eine Differenzierung zwischen den beiden Streukomponenten ist prinzipiell durch den Vergleich der gemessenen mit den berechneten zeitabhängigen Verteilungsfunktionen möglich. Wie in dem vorausgegangenen Abschnitt gezeigt, hängt die Verteilungsfunktion sogar sehr empfindlich von den einzelnen Beiträgen der elastischen und inelastischen Streuung ab. Diese Eigenschaft war aber bei den vorhandenen Datensätzen nicht vollständig nutzbar, da die gemessenen Verteilungsfunktionen experimentell stark verbreitert sind. Die Unterschiede in den Details zwischen elastischer und inelastischer Streuung konnten somit nur unvollständig aufgelöst werden. In künftigen

Experimenten könnte dies durch eine Verringerung der Bandbreite der UV-Impulse für die Photoemission deutlich verbessert werden.

Abbildung 6.15 vergleicht die experimentell bestimmte Stromdichte (rote Punkte) im Dirac-Kegel von Bi_2Te_3 nach Anregung mit einem s-polarisierten THz-Impuls mit der Stromdichte (rote Linie) aus der Simulation der Boltzmann-Gleichung für verschiedene Kombinationen von elastischer und inelastischer Streuzeit ($\tau_e, \tau_i = 0,2; 1,0; 5,0$ ps) als Funktion der Verzögerung t zwischen THz- und Abfrage-Impuls. Das in der Simulation verwendete elektrische Feld ist aus dem Impulsstreaking der Photoemissionsdaten gewonnen. Da eine Veränderung der Streuzeiten bei konstantem Feld zu einer Änderung der Amplitude der erreichten Stromdichte führt (kürzere Streuzeiten führen zu kleineren Stromdichten), musste die experimentell bestimmte Feldstärke von $E_{\text{THz}} = 2,8 \pm 0,5 \text{ kV/cm}^{-1}$ skaliert werden, um die experimentell bestimmte Stromstärke von $j \approx 2,0 \text{ A/cm}$ zu erreichen. Die verwendete Feldamplitude E_{THz} ist für jede Teilabbildung daher separat angegeben. Der THz-Transient (grau gestrichelte Linie) ist zur besseren Vergleichbarkeit in jeder Teilabbildung auf die maximale simulierte Stromdichte normiert. Die für den Vergleich verwendeten Abstufungen der Streuzeiten mit einem Faktor fünf um 1 ps sind so gewählt, dass die Veränderungen der Stromdichte und auch der Verteilungsfunktionen bei den gewählten Kombinationen besonders deutlich sind. Für die genaue Bestimmung der Zerfallszeiten ist auf Simulationen mit feineren Abstufungen zurückgegriffen worden.

Für $\tau_e = \tau_i = 0,2 \text{ ps}$ in (a) liegt die Stromdichte über den gesamten Bereich der Verzögerung t deutlich vor den gemessenen Werten, da die erzeugte Asymmetrie aufgrund der kurzen Zerfallszeiten zu schnell in die ungestörte Verteilung relaxiert und j damit nahezu unverzögert dem elektrischen Feld folgt. Eine Erhöhung der effektiven Lebensdauer durch ein Verringern der elastischen Streuung in (b) und (c) verschiebt die Positionen der Extrema systematisch zu größerer Verzögerungen und damit näher zu den experimentellen Daten, gleichzeitig nähern sich die Amplituden der Extrema den experimentellen Daten weiter an. Selbst im Fall vergleichbar niedriger elastischer Streuung ($\tau_e/\tau_i = 25$) liegt die Simulation jedoch immer noch deutlich vor den Daten. In Verbindung mit den notwendigen Feldstärken weit über dem experimentell ermittelten Wert muss τ_i damit deutlich oberhalb von $0,2 \text{ ps}$ liegen. Verfolgt man ausgehend von (a) die Stromdichten in Richtung ansteigender inelastischer Streuzeit τ_i in (d) und (g), so beeinflusst die inelastische Streuung im Bereich $\tau_i \gg \tau_e$ den Verlauf der Stromdichte nur noch im Detail.

Für eine elastische Streurate $\tau_e = 1 \text{ ps}$ (b,e,h) verläuft die simulierte Stromdichte für $\tau_i = 0,2 \text{ ps}$ (b) noch deutlich vor den experimentellen Daten. Mit $\tau_e = \tau_i = 1 \text{ ps}$ (e) ist die Übereinstimmung von Position und Amplitude der Extrema der Stromdichte zwischen Simulation und Experiment sehr gut. Die berechnete Stromdichte entspricht insbesondere im Bereich hoher Feldstärken $0,5 \text{ ps} \leq t \leq 1,5 \text{ ps}$ den gemessenen Werten in Amplitude und Phase. Auch für hohe Verzögerungen von $t > 1,5 \text{ ps}$ wird der Verlauf der Stromdichte exakt von der Simulation wiedergegeben. Die Amplitude des

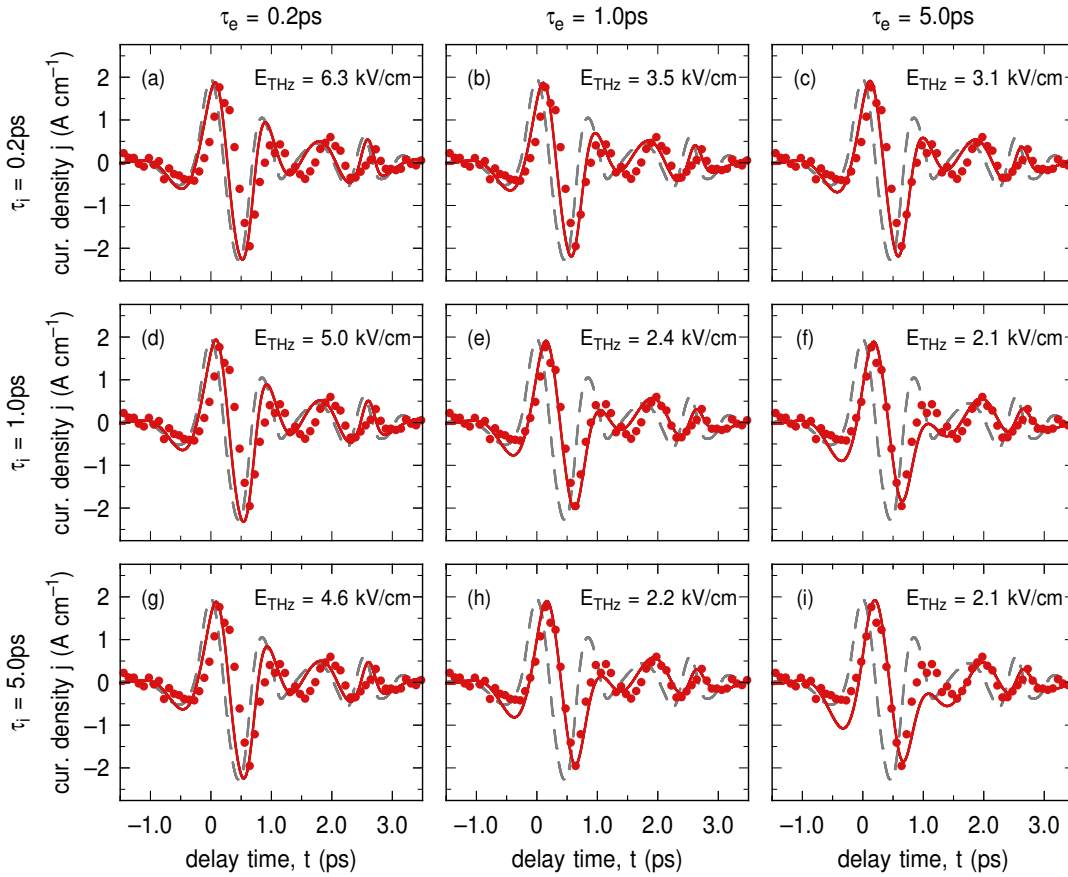


Abb. 6.15: Aus den Photoemissionsdaten bestimmte Stromdichte j (rote Punkte) in Abhängigkeit der Verzögerung t zwischen dem s-polarisierten THz-Impuls (grau gestrichelt) und dem Abfrageimpuls. (a-i) Die aus der Boltzmann-Gleichung berechnete Stromdichte für verschiedene Kombinationen der elastischen τ_e und inelastischen τ_i Streuzeit. Das elektrische Feld (grau gestrichelte Linie) ist auf die jeweils maximale Stromdichte normiert, die Amplitude E_{THz} des elektrischen Feldes ist für jede Teilabbildung separat vermerkt.

verwendeten elektrischen Feldes von $E_{\text{THz}} = 2,4 \text{ kV/cm}^{-1}$ ist im Rahmen des Fehlers identisch zum experimentellen Wert von $E_{\text{THz}} = 2,8 \pm 0,5 \text{ kV/cm}^{-1}$. Bei weiterer Erhöhung der inelastischen Streuzeit auf $\tau_i = 5 \text{ ps}$ (h) zeigen sich im Bereich der Extrema bei $t = -0,5 \text{ ps}$ und 1 ps kleine Abweichungen.

Eine weitere Erhöhung der elastischen Streuzeit auf $\tau_e = 5 \text{ ps}$ (c,f,i) zeigt in (c) die Simulation der Stromdichte in Bezug auf die Verzögerung t charakteristisch vor den experimentellen Daten. Für $\tau_i = 1 \text{ ps}$ (f) variiert die Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment stark je nach betrachtetem Halbzyklus. Während der Zeitpunkt der Minima und Maxima der Stromdichte von der Simulation gut wiedergegeben wird, ist die Amplitude entweder überschätzt ($t = 0,5 \text{ ps}$), gut abgebildet ($t = 0 \text{ ps}$) oder unterschätzt ($t = 0,5 \text{ ps}$ und $t = 1 \text{ ps}$). Die Kombination $\tau_e = 5 \text{ ps}$, $\tau_i = 1 \text{ ps}$ gibt damit bei im Vergleich zum Experiment zu kleinem Feld die gemessene

Stromdichte nur unzureichend wieder. Die in (f) festgestellten Abweichungen werden bei nochmaliger Erhöhung der inelastischen Streuzeit zu $\tau_i = 5$ ps (i) noch ausgeprägter. Die im Vergleich zur Länge der Halbzyklen sehr hohe Streuzeit führt dazu, dass die Stromdichte nahezu dem Integral des Feldtransienten entspricht. Insgesamt lässt sich aus (c,f,i) schlussfolgern, dass $\tau_e < 5$ ps sein muss, um unabhängig von der gewählten inelastischen Streuzeit die experimentellen Ergebnisse ausreichend gut wiedergeben zu können.

Aus Abbildung 6.15 lässt sich damit zusammenfassend ablesen, dass mit einer Kombination von $\tau_e = 1$ ps und $\tau_i = 1$ ps und dazugehöriger Feldamplitude von $E_{\text{THz}} = 2,4 \text{ kV/cm}^{-1}$ die Simulation der Boltzmann-Gleichung die gemessene Stromdichte exzellent reproduzieren kann. Kleine Verringerungen der Streuzeiten führen zu einer zu negativen Verzögerungen verschobenen Stromdichte, bei einer Erhöhung der Streuzeiten finden sich ab ungefähr 2 ps, vor allem im Bereich hoher Verzögerungen, Abweichungen zwischen Experiment und Simulation.

Die Photoemissionsspektren ermöglichen es, neben der Stromdichte j auch die Verteilungsfunktion zur Bestimmung der elastischen und inelastischen Streuzeiten zu nutzen. In Abbildung 6.16 ist hierzu die experimentell gemessene Verteilungsfunktion für $\pm k_{\parallel}$ (rote/blau Punkte) zum Zeitpunkt des minimalen Photostroms ($t = 0,64$ ps) gezeichnet. Analog zu Abbildung 6.15 sind die Ergebnisse der Simulation der Boltzmann-Gleichung (rote/blau Linie) zum entsprechenden Zeitpunkt in Abhängigkeit von τ_i und τ_e sowie die Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion für $T = 80$ K des ungestörten Systems gezeigt. Im Gegensatz zu Abbildung 6.13 und 6.14 sind die Verteilungen hier mit einer Gauß-Verteilung (fwhm = 45 meV) gefaltet, um einen direkten Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen zu ermöglichen.

Die Verteilungsfunktionen zeigen eine deutliche und sehr systematische Abhängigkeit von den einzelnen Streuzeiten. Allgemein zeigt sich, dass eine Erhöhung der elastischen Streuzeit τ_e (vergleiche (d) und (f)) die Verbreiterung der Verteilung reduziert, da die im Verhältnis stärkere inelastische Streuung zu einer Relaxation zurück in die ungestörte, nicht verbreiterte Verteilung führt. Eine Erhöhung von τ_i (siehe (a) und (g)) führt damit zu einer Verbreiterung der Verteilung.

Ein Vergleich der simulierten Verteilungsfunktionen für $\tau_e = 0,2$ ps (a,d,g) mit den experimentellen Daten zeigt eine signifikant zu starke Verbreiterung in der Simulation. Während die berechnete und gemessene Verteilung zu $\tau_i = 0,2$ ps für $+k_{\parallel}$ und $\varepsilon - \varepsilon_F > 0$ noch ähnlich sind, liegt die Abweichung für größere τ_i (d,g) deutlich über der experimentellen Unsicherheit. In Verbindung mit einer Feldstärke oberhalb der experimentell bestimmten kann somit direkt geschlussfolgert werden, dass die elastische Streuzeit τ_e größer 0,2 ps sein muss.

Mit einer elastischen Streuzeit von $\tau_e = 1$ ps (b,e,h) kann die Simulation die experimentellen Daten in ihrem grundsätzlichen Verlauf gut wiedergeben. Je nach Wahl von τ_i kann die Übereinstimmung für $-k_{\parallel}$ mit $\tau_i = 5$ ps oder für $+k_{\parallel}$ mit $\tau_i = 0,2$ ps optimiert werden. Für $\tau_e = \tau_i = 1$ ps ist die Summe der Abweichung für $\pm k_{\parallel}$ minimiert.

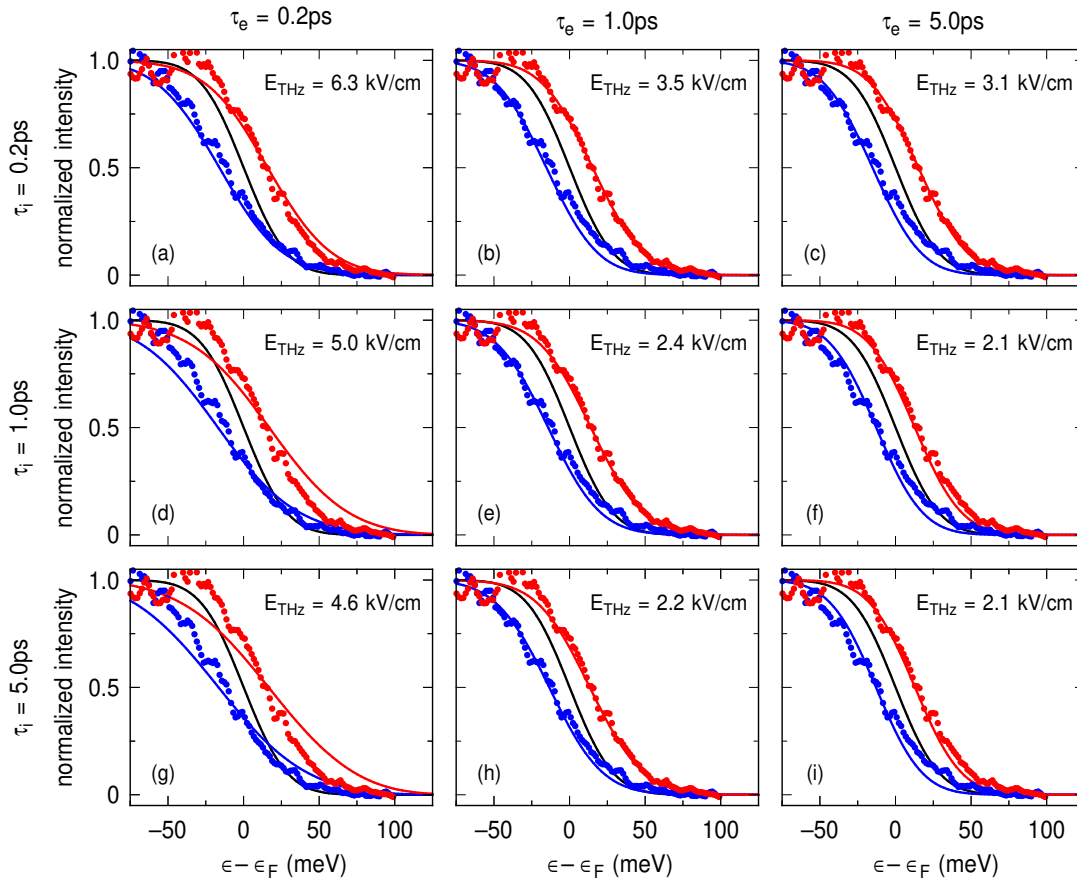


Abb. 6.16: Die experimentell bestimmten Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ (rote/blau Punkte) zum Zeitpunkt der minimalen Stromdichte ($t = 0,64$ ps) als Funktion der Energie $\varepsilon - \varepsilon_F$. Die Verteilungen (rote/blau Linie) sind aus der Lösung der Boltzmann-Gleichung zu verschiedenen Amplituden E_{THz} des elektrischen Feldes und bei verschiedenen Werten der elastischen τ_e und inelastischen τ_i Streuzeiten zum Zeitpunkt der minimalen Stromdichte extrahiert (vergleiche Abbildung 6.15). Die Fermi-Dirac-Verteilung für $T=80$ K des ungestörten Systems (schwarze Linie) ist zum Vergleich ebenfalls eingezeichnet. Die experimentelle Verbreiterung ist bereits in die Verteilungen eingerechnet.

Die Abweichungen zwischen den simulierten und gemessenen Verteilungsfunktionen werden nach einer weiteren Erhöhung der elastischen Streuzeit auf $\tau_e = 5$ ps (c,f,i) systematisch stärker, da die Verteilungsfunktionen unabhängig von τ_i nicht ausreichend stark verbreitert sind.

Auch aus der Betrachtung der Verteilungsfunktionen kann damit für die elastische und inelastische Zerfallszeit ein Wert von mindestens $\tau_e = \tau_i = 1,0$ ps bestimmt werden. In Verbindung mit $E_{\text{THz}} = 2,4 \text{ kV/cm}^{-1}$ stellen diese Werte einen besonders guten Kompromiss zur Beschreibung der gemessenen Verteilungsfunktionen dar. Die aus Untersuchungen der transienten Stromdichte und der Verteilungsfunktion ermittelten Streuzeiten stimmen daher überein. Die erreichte Übereinstimmung zwischen Simula-

tion und Experiment ist besonders im Hinblick auf das stark vereinfachte, eindimensionale Modell der Streuung mit nur einem elastischen Streuterm und der inelastischen Streuung in Relaxationszeitnäherung bemerkenswert gut. Eine vollständige und damit auch komplexere Betrachtung der Streuung innerhalb des Dirac-Kegels im dreidimensionalen Impulsraum erscheint als eine Möglichkeit, die verbliebenen systematischen Abweichungen zu verstehen und die Streuzeiten im topologischen Oberflächenzustand genauer zu bestimmen.

Für die Elektronen im Dirac-Kegel lässt sich aus der elastischen und inelastischen Streuzeit eine effektive Streuzeit $\tau_g = (\tau_e^{-1} + \tau_i^{-1})^{-1} = 0,5 \text{ ps}$ berechnen. Ein Vergleich mit $\tau_{800\text{nm}} = 1,8 \text{ ps}$ aus einem 2PPE Experiment nach Anregung mit 800 nm-Impulsen [17] ist nur eingeschränkt sinnvoll. Zwar untersuchen im Grunde genommen beide Experimente die Dynamik in einem Nicht-Gleichgewichtszustand, nach Anregung mit 800 nm-Impulsen ist die Anregung aber aufgrund der hohen Photonenenergie über einen großen Energiebereich verteilt und des Weiteren symmetrisch im k -Raum. Im hier untersuchten Fall der Intrabandbeschleunigung der Elektronen wird jedoch die gesamte Besetzung in einen in k asymmetrischen Nichtgleichgewichtszustand getrieben, mit einer nur geringen Änderung der Energie der Elektronen. Das Experiment entspricht damit eher einem klassischem Transportexperiment mit statischen Feldern. Durch die Verschiebung des Fermikreises entstehende zusätzliche elastische Zerfallskanäle zwischen verschiedenen k . Die signifikante Entvölkerung von im Gleichgewicht besetzten Zuständen stellt ebenfalls zusätzliche Streukanäle zur Verfügung, sodass in Summe der Zerfall nach Beschleunigung in THz-Feldern schneller stattfinden kann.

Zusammenfassend konnten in diesem Abschnitt durch Untersuchungen des Einflusses der elastischen und inelastischen Streuzeiten auf die Lösung der Boltzmann-Gleichung die Aufspaltung und Verbreiterung der Verteilungsfunktionen im Dirac-Kegel eines topologischen Isolators nach Beschleunigung im elektrischen Feld eines THz-Impulses simuliert werden. Sowohl für rein elastische als auch rein inelastische Streuung wird in Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen eine Verschiebung der Verteilungsfunktion im Dirac-Kegel des topologischen Isolators beobachtet. Die Verteilungsfunktionen sind für beide Streuprozesse im Vergleich zur Gleichgewichtsverteilung verbreitert, die Verbreiterung ist für elastische Streuung stärker ausgeprägt. Anhand der durchgeführten Simulation konnten aus einem Vergleich mit der experimentell bestimmten Stromdichte und den Verteilungsfunktionen gezeigt werden, dass die elastische und inelastische Streuzeit der Elektronen im Dirac-Kegel von Bi_2Te_3 mindestens $\tau_e = \tau_i = 1 \text{ ps}$ beträgt.

6.3 Phononenanregung in Bi_2Te_3

Die bisherigen Abschnitte konzentrierten die Betrachtung der Anregung des topologischen Isolators durch das elektrische Feld auf Zeitpunkte während, und wenige Pikosekunden nach dem THz-Impuls, da in diesem Zeitbereich die Intrabandbeschleunigung im Dirac-Kegel zu beobachten ist. Eine Betrachtung des Energiestreakings für Verzögerungen bis zu $t = 25$ ps, deutlich größer als die Pulsdauer des THz-Impulses, zeigt eine Oszillation von $\Delta\varepsilon_{\text{streak}}$ im Bereich von bis zu ± 20 meV. In Abbildung 6.17 (a) ist für eine Anregung mit s-polarisiertem THz-Feld die Energieverschiebung des Photoemissionsspektrums für Verzögerungen bis 27,5 ps gezeigt, der Feldverlauf des THz-Impulses ist in (b) dargestellt. Die Verschiebung $\Delta\varepsilon_{\text{streak}}$ zeigt deutliche Oszillationen für Verzögerungszeiten größer als 2 ps (grau gestrichelte Linie in (a) und (b)) und bis zu 17,5 ps.

Die emittierten Photoelektronen können bei solch hohen Verzögerungen nicht mehr mit dem THz-Feld außerhalb der Probe wechselwirken, da der THz-Impuls sich bereits wieder von der Probe entfernt hat. Die Änderung der kinetischen Energie kann daher nicht durch das Streaking im elektrischen Feld hervorgerufen werden und muss aus einer zeitabhängigen Veränderung der Bandstruktur im Material als Folge einer langlebigen Anregung durch den THz-Impuls resultieren. In der Literatur wurden solche periodischen Oszillationen des Photoemissionsspektrums nach Anregung mit optischen Impulsen, wenn auch mit substanziell kleineren Amplituden, bereits gezeigt [225]. Nach Anregung mit 800 nm Impulsen wurden periodische Energieverschiebungen im Bereich von nur 0,3 meV mit einer Frequenz von $\approx 1,9$ THz beobachtet und der Bandrenormalisierung nach Anregung des A_{1g} Volumenphonons zugeordnet.

Für eine Analyse des möglichen Ursprungs der beobachteten Bandstrukturveränderung wurde eine Fourieranalyse von $\Delta\varepsilon_{\text{streak}}(t)$ durchgeführt. Dabei wurde die Fouriertransformation in zwei unabhängigen Zeitbereichen, während und nach dem THz-Impuls, durchgeführt. Die Amplitude der Fourierkoeffizienten ist in Abbildung 6.17 (c) für den Zeitbereich während (rote Linie) und nach (blaue Linie) dem THz-Impuls aufgetragen. Das Fourierspektrum in den beiden Zeitintervallen unterscheidet sich signifikant voneinander. Während das Fourierspektrum vor 2 ps ein Haupt- und ein Nebenmaximum bei 0,5 THz und 1,0 THz besitzt und dann zu höheren Frequenzen bis 2,0 THz kontinuierlich abfällt, ist das Spektrum im Bereich über 2 ps von vier schmalen Linien im Bereich von 0,25 bis 0,75 THz geprägt. Für Zeiten, in denen das Elektron vom elektrischen Feld vor der Probe beschleunigt wird, erwartet man aufgrund des integrativen Charakters der Wechselwirkung eine hohe Ähnlichkeit der Fourierspektren der Energieverschiebung und des THz-Impulses. Ein Vergleich des Spektrums bis 2 ps mit dem Fourierspektrum des THz-Impulses (Abbildung 3.4) zeigt solch eine hohe qualitative Übereinstimmung. Die Energieverschiebung in diesem Zeitintervall wird daher durch die Wechselwirkung der Photoelektronen mit dem THz-Impuls im Vakuum dominiert.

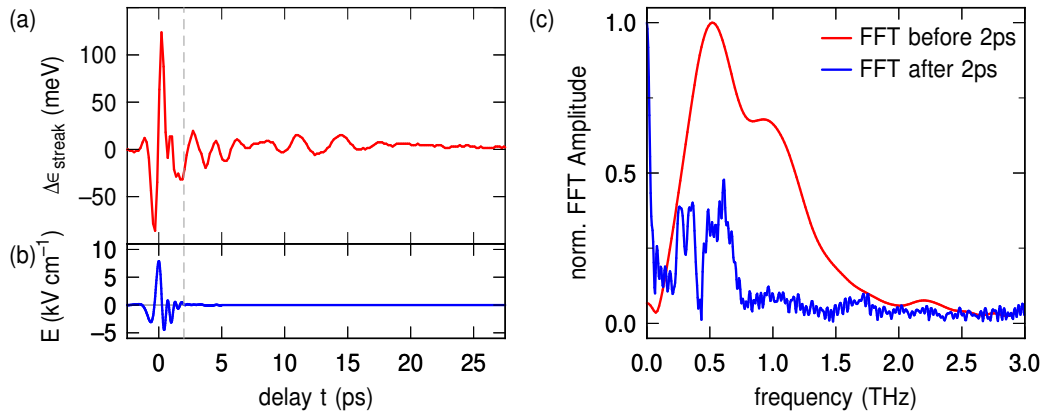


Abb. 6.17: (a) Energieverschiebung $\Delta\epsilon_{\text{streak}}$ des Photoemissionsspektrums nach Anregung mit s-polarisierten THz-Impulsen für große Verzögerungszeiten. Die gestrichelte Linie entspricht der Grenze zwischen den Zeitintervallen in (c). (b) Zu (a) korrespondierender, skaliert THz-Impuls aus externer EOS Messung. (c) Normierte Amplitude der Fouriertransformation von $\Delta\epsilon_{\text{streak}}$ für Verzögerungen vor 2 ps (rote Linie) und nach 2 ps (blaue Linie).

Das Fourierspektrum für Verzögerungen größer 2 ps zeigt vier schmale, deutliche Linien bei 0,27 THz, 0,35 THz, 0,49 THz und 0,61 THz. Um 1,0 und 1,75 THz sind möglicherweise zwei weitere im Vergleich deutlich breitere und weniger intensive Linien erkennbar. Aufgrund der Dominanz des Energiestreakings im Spektrum für $t < 2$ ps können aus den vorliegenden Daten der genaue Zeitpunkt und die Phasenlage bezüglich der Anregung für die beobachteten Moden nicht ohne Weiteres bestimmt werden. Die Frequenzen der beiden breiten Moden liegen nah an den niedrigsten zwei Volumenphononen am Γ -Punkt ($A_{1g}^1 = 1,88$ THz, $E_g^1 = 0,99$ THz [226–228]), das Auftreten dieser Frequenzen kann daher durch die Anregung der A_{1g}^1 und E_g^1 Phononen ähnlich wie in [225] erklärt werden. Die vier intensivsten Linien liegen bei Frequenzen deutlich unterhalb der A_{1g}^1 und E_g^1 Moden. Sie können deshalb keinem Volumenphonon zugeordnet werden. Unter Berücksichtigung der nur an der Oberfläche möglichen Schwingungsmoden der einzelnen Quintupellagen zueinander (engl.: *interlayer shear and breathing modes*) existieren jedoch weitere niederfrequenteren Schwingungen (siehe Abbildung 6.18 (b)) [228]. Da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des topologischen Oberflächenzustands zum größten Teil in der obersten Quintupellage lokalisiert ist [45, 66, 80, 229, 230] scheint eine effektive Beeinflussung des Photoemissionssignals aus dem Dirac-Kegel durch diese niederenergetischen Moden an der Oberfläche vorstellbar.

Die Energie einer einzelnen Oberflächenphononenmode nimmt dabei mit der Anzahl an beteiligten Quintupellagen kontinuierlich ab und konvergiert gegen null. Zusätzlich steigt die Anzahl möglicher Moden mit jeder zusätzlichen Lage. Ramanuntersuchungen an Bi_2Te_3 Dünnschicht Proben konnten die Frequenzen der niedrigsten

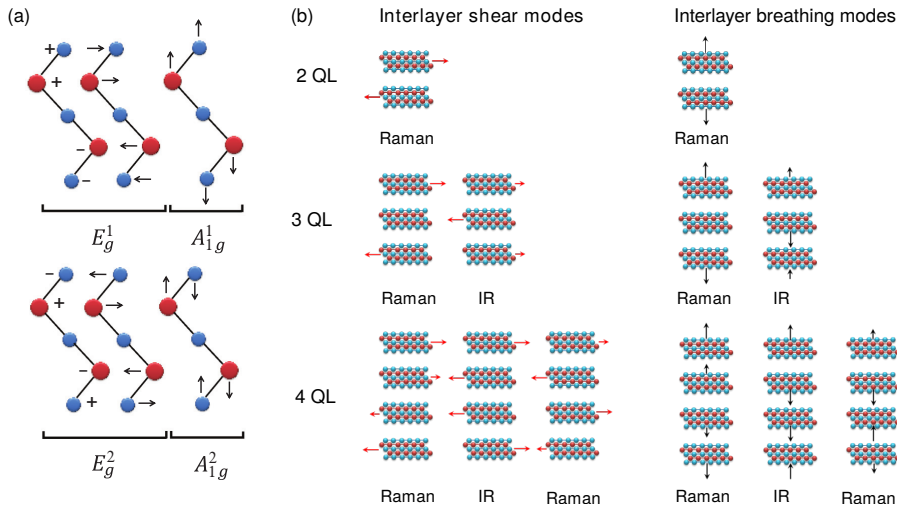


Abb. 6.18: (a) Niederenergetische Phononenmoden innerhalb einer Quintupellage (QL) von Bi_2Te_3 . (b) Schwingungsmoden der einzelnen QL zueinander in Abhängigkeit der Anzahl beteiligter QL, mit Angabe, ob es sich um raman- oder infrarotaktive (IR) Moden handelt. (Abbildung aus [228])

Oberflächenmoden zu 0,64 und 0,48 THz (2 und 3 QL, breathing) sowie 0,38 und 0,29 THz (2 und 3 QL, shear) bestimmen [228]. Die starke Ähnlichkeit zu den Frequenzen der aus den Photoemissionsdaten ermittelten Moden lässt im Rahmen der experimentellen Unsicherheiten den Schluss zu, dass möglicherweise die Anregung oberflächennaher Phononenmoden in den oberen Quintupellagen in Bi_2Te_3 die beobachtete niederfrequente Oszillation des Photoemissionsspektrums verursachen kann.

6.4 Zusammenfassung und Ausblick: Anwendungen im Rahmen der Lichtwellenelektronik

In diesem Kapitel wurden zeit- und winkelaufgelöste ARPES-Experimente am topologischen Isolator Bi_2Te_3 nach Anregung durch intensive THz-Impulse diskutiert. Das elektrische Feld des THz-Impulses wechselwirkt dabei sowohl mit den Elektronen im Festkörper als auch mit den Photoelektronen auf ihrem Weg zum Detektor. Die Beobachtung des Energiestreakings und erstmalig auch eines Impulsstreakings aufgrund einer starken Beschleunigung der photoemittierten Elektronen im Vakuum durch das elektrische Feld des THz-Impulses erlaubt die Rekonstruktion der senkrecht und parallel zur Oberfläche ausgerichteten Komponenten des elektrischen Feldes vor und innerhalb der Probe. Die Wechselwirkung des THz-Impulses mit den Elektronen im Festkörper führt zu einer ausgeprägten Intrabandbeschleunigung der Elektronen im

Dirac-Kegel auf einer Zeitskala weniger Pikosekunden. Während der Photostrom trotz langer Streuzeiten von mindestens 1 ps nach wenigen Pikosekunden abgeklungen ist, kann für Verzögerungen von bis zu 20 ps zusätzliche Oszillation des Photoelektronenspektrums mit Frequenzen kleiner 1 THz beobachtet werden.

Im Rahmen der Experimente konnten erstmalig die Verschiebung und Verbreiterung der Verteilungsfunktionen der Elektronen nach Beschleunigung im elektrischen Feld eines THZ-Impulses direkt in der Bandstruktur beobachtet werden. Die Fermi-Verteilungen sind um bis zu $0,005 \text{ \AA}$ und damit um knapp 7% des Fermiwellenvektors k_F verschoben. Die beobachtete Asymmetrie im k -Raum entspricht einem Photostrom mit Stromdichten von 2 A/cm . Aus einem Vergleich der experimentellen Daten und der Simulation der Elektronendynamik mit Hilfe der Boltzmann-Gleichung konnten eine elastische und inelastische Lebensdauer der Elektronen von mindestens $\tau_e = \tau_i = 1 \text{ ps}$ bestimmt werden.

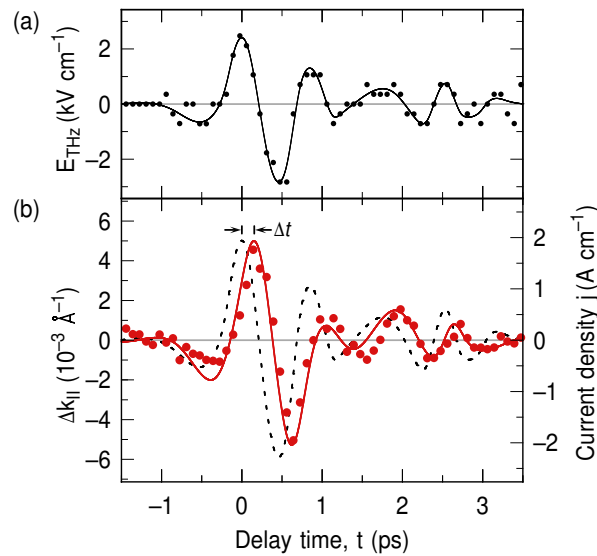


Abb. 6.19: (a) Das aus dem Parallelimpulsstreaking rekonstruierte elektrische Feld (schwarze Punkte) der stehenden Welle parallel zur Oberfläche. Die schwarze Kurve ist ein Polynomzug durch die Daten. (b) Die Stromdichte j an der Oberfläche (rote Punkte) berechnet aus den Verteilungsfunktionen der Elektronen als Funktion der Verzögerung zwischen THz- und UV-Impuls. Die rote Kurve zeigt die simulierte Stromdichte für Zerfallszeiten von $\tau_e = \tau_i = 1 \text{ ps}$ für das elektrische Feld in (a), das zusätzlich als gestrichelte Linie eingezeichnet ist.

In Abbildung 6.19 sind die Ergebnisse dieses Kapitels zur Intradbandbeschleunigung noch einmal graphisch zusammengefasst. Teilabbildung (a) zeigt das aus dem Parallelimpulsstreaking ermittelte elektrische Feld parallel zur Oberfläche (schwarze Punkte) und einen an die Daten angepassten Polynomzug. Aus der experimentell bestimmten Verschiebung Δk_{\parallel} der Verteilungsfunktionen (rote Punkte) kann die zeitliche Entwicklung der Oberflächenstromdichte j im Dirac-Kegel des topologischen Isolators

direkt berechnet werden. Die Elektronendynamik im Dirac-Kegel wurde mit Hilfe der Boltzmann-Gleichung simuliert. Es kann eine hervorragende Übereinstimmung zwischen experimentellen Daten und dem Ergebnis der Simulation (rote Linie in (b)) für eine elastische Lebensdauer $\tau_e = 1$ ps und eine inelastische Lebensdauer $\tau_i = 1$ ps der Elektronen im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 erreicht werden. Die relativen Fehler der Zerfallszeiten liegen in der Größenordnung von $\delta\tau < \pm 20\%$. Die echten Streuzeiten liegen unter Umständen über den hier genannten Werten, da die Bestimmung eines oberen Grenzwertes aufgrund der begrenzten zeitlichen Länge der Halbzyklen des THz-Impulses von rund 0,5 ps und der durch die experimentelle Auflösung bedingten Verbreiterung der Photoemissionsspektren nur eingeschränkt möglich ist. Die Simulation kann nichtsdestotrotz den zeitlichen Verlauf der Stromdichte mit der experimentell beobachteten Verzögerung Δt zum elektrischen Feld (gestrichelte Linie), die Form und Position der Verteilungsfunktionen $f_{\pm k}$ des Dirac-Kegels und die Amplitude des elektrischen Feldes präzise wiedergeben.

Die Elektronen im topologischen Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 zeigen hohe elastische und inelastische Streuzeiten. Dies führt damit zu einer langen Lebensdauer des sich quasi ballistisch ausbreitenden Photostrom. Die sich daraus ergebende hohe Kohärenzzeit des Photostroms im Bereich mehrerer 100 fs liegt zwei Größenordnungen über den bisher beobachteten Zeiten für Lichtwellen-getriebene Elektronendynamik in Halbleitern und Dielektrika [200, 202, 231, 232] und eröffnet zusammen mit der inhärenten Spinpolarisation des Stroms neue Möglichkeiten in der Lichtwellen-getriebenen Elektronik.

Die Beschleunigung von Elektronen im Dirac-Kegel eines topologischen Isolators erfolgt aufgrund der linearen Dispersion schneller als für massive Teilchen in parabolischen Bändern. Der dabei entstehende Strom hat eine Lebensdauer τ_t von

$$\tau_t = \left(\frac{1}{\tau_i} + \frac{2}{\tau_e} \right)^{-1}. \quad (6.16)$$

Die elastische Streuung trägt doppelt zum Zerfall des Stroms bei, da ein Elektron bei der Streuung von $+k$ nach $-k$ die Kohärenz der Anregung auf beiden Seiten des Dirac-Kegels reduziert. Für die sich mit $v_F = 4,1 \text{ Å fs}^{-1}$ bewegenden Elektronen im Dirac-Kegel ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von $\gamma = v_F \tau_t = 137 \text{ nm}$. In einem einfachen Modell mit einem auf den Punkt $y = 0$ begrenzten THz-Impuls würde der lokalisiert an diesem Ort erzeugte Photostrom vom Ort der Erzeugung aus abfließen und die Amplitude des Stroms mit einer Zerfallskonstante von 137 nm exponentiell abklingen.

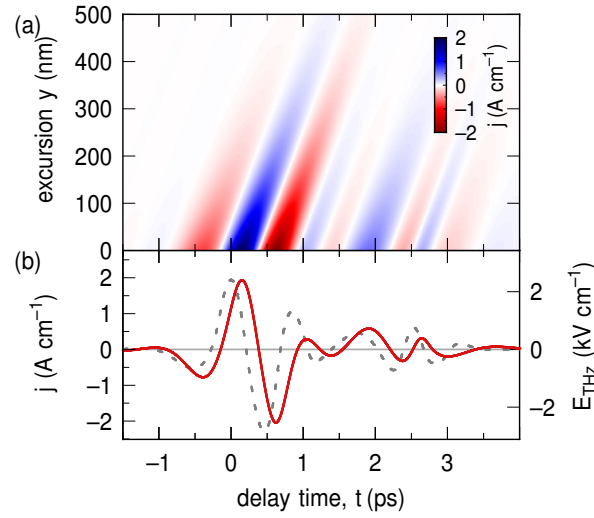


Abb. 6.20: (a) Die lokale Stromdichte $j(y,t)$ im topologischen Oberflächenzustand als Funktion der Verzögerung t und des Abstands y vom Ort der Erzeugung. (b) Das elektrische Feld E_{THz} (grau gestrichelte Linie) und die daraus berechnete Stromdichte j (rote Linie) für $\tau_e = \tau_i = 1$ ps als Funktion der Verzögerung t .

Zur Veranschaulichung der Ausbreitung des Photostroms kann in einem einfachen eindimensionalen Modell die von Ort und Zeit abhängige Stromdichte $j(y,t)$ als

$$j(y,t) = j_0(t) \left(t - \frac{y}{v_F} \right) \exp^{-\frac{y}{\gamma}} \quad (6.17)$$

mit $j_0(t) = j(0,t)$, der aus der Boltzmann-Gleichung extrahierten Stromdichte, im Oberflächenzustand modelliert werden. In Abbildung 6.20 (a) ist die lokale Stromdichte $j(y,t)$ als Funktion der Verzögerung t und des Ortes y aufgetragen. Das erzeugende elektrische Feld E_{THz} und die daraus berechnete Stromdichte $j_0(t)$ für $\tau_e = \tau_i = 1$ ps sind zusätzlich in (b) abgebildet. Der vom elektrischen Feld erzeugte spinpolarisierte Strom fließt vom Ort der Erzeugung bei $y = 0$ und ist noch im Abstand mehrerer 100 nm nicht vollständig zerfallen. Der erzeugte Strom propagiert damit um Größenordnungen weiter als in anderen Dielektrika [200, 202, 231, 232] oder den in heutigen Transistoren verwendeten Gate-Breiten. Die Kombination aus langer Lebensdauer, quasi ballistischem Transport und Spinpolarisation des Photostroms macht den topologischen Isolator Bi_2Te_3 damit zu einem einzigartigen Material für ultraschnelle und Lichtwellen-getriebene Elektronik.

Anhang A

Photoemissionsexperiment ZAPES III

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neues Experiment für zeit- und winkelaufgelöste Photoelektronenspektroskopie an Oberflächen mit dem Namen ZAPES III aufgebaut. Das folgenden Kapitel fasst die Eigenschaften und Besonderheiten der eigens konstruierten Ultrahochvakuumkammer zusammen und präsentiert mit dem neuen Elektronenspektrometer gemessene Daten. Im letzten Abschnitt wird auf die Softwarebibliothek zur Steuerung des Spektrometers und zur Aufnahme von Messdaten sowie kurz auf das verwendete Datenspeicherformat eingegangen.

A.1 Ultrahochvakuumkammer

Die Konstruktion des ZAPES III-Experimentes erfolgte mit dem Ziel, in einer einzigen Kammer hochaufgelöste Photoelektronenspektroskopie niederenergetischer Elektronen im Ultrahochvakuum (UHV) mit vielfältig erweiterbaren Möglichkeiten zur Charakterisierung und Präparation wohldefinierter Oberflächen zu verbinden. Beide Aspekte stellen unterschiedliche, nicht einfach miteinander zu vereinbarende Anforderungen an das Design der Vakuumkammer. Die ZAPES III besteht daher aus zwei dauerhaft miteinander verbundenen, prinzipiell aber eigenständigen Vakuumkammern, einer mit wenigen Vakuumflanschen ausgestatteten Mess- und einer mit vielen, vergleichsweise großen Flanschen versehenen Präparationskammer (siehe Abbildung A.1).

Für die Energie- und Winkelauflösung spielen in Experimenten an Elektronen mit kinetischen Energien im Bereich weniger eV insbesondere Magnetfelder auf der Elektronenbahn zwischen Probe und Detektor eine entscheidende Rolle. Es ist daher nötig, innerhalb der Messkammer das Erdmagnetfeld ($\approx 50 \mu\text{T}$) bestmöglich abzuschirmen. Für das ZAPES III-Experiment ist hierfür die Vakuumkammer von VG Scienta nicht komplett aus μ -Metall gefertigt worden, sondern es wurde eine Edelstahlkammer mit zwei Lagen aus μ -Metall ausgekleidet. Um das Eindringen des Erdmagnetfeldes in die Kammer möglichst zu verhindern, ist die Anzahl und die Größe der Vakuumflansche an der Messkammer auf ein Minimum reduziert. Neben den mit μ -Metall ausgekleideten drei CF63 Flanschen und zwei CF100 Flanschen wurden ausschließlich CF40 und CF16 Flansche verbaut. Je nach angedachtem Anwendungsfall sind

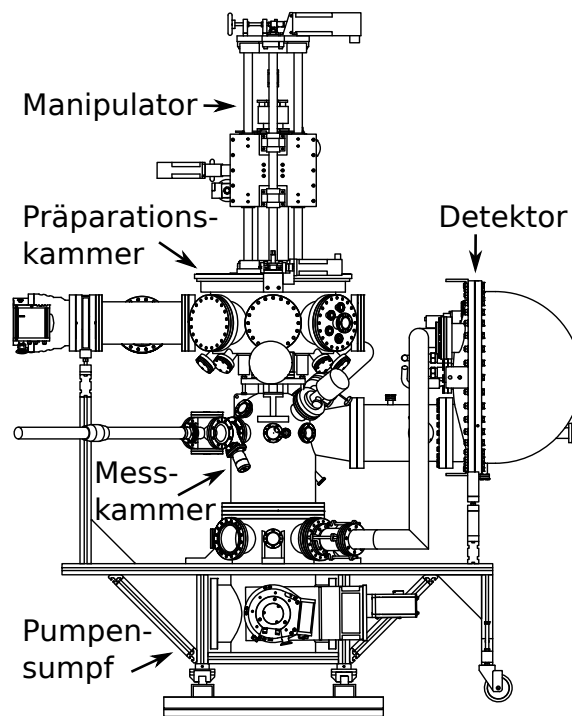


Abb. A.1: Schemazeichnung des ZAPES III Experimentes.

die Bohrungen im μ -Metallschild kleiner ausgeführt als die vollen Innendurchmesser der Flansche. Der CF300 Flansch zum Pumpensumpf ist zur Reduktion der besonders intensiven senkrechten Komponente des Erdmagnetfeldes ($\approx 40 \mu\text{T}$) mit einem zweilagigen μ -Metall-Netz mit 70% Transmission ausgekleidet. Der hohe Aufwand der magnetischen Abschirmung resultiert in einer Reduktion des Magnetfeldes an der Messposition in der Kammer auf $B_{\text{vert}} = 0,2 \mu\text{T}$ und $B_{\text{horiz}} = 0,05 \mu\text{T}$. An der Messkammer sind neben dem Scienta DA30 Elektronenspektrometer eine Röntgenröhre (Prevac RS40 B1) und eine Ultraviolettquelle (Scienta Omicron HIS 13) sowie eine Apparatur zur Erzeugung höherer Harmonischer [137, 175] angeschlossen. Der typische Kammerdruck von $7 \cdot 10^{-11}$ mbar wird von einer Turbomolekularpumpe (Pfeiffer TMU 520) mit einer Scrollpumpe (Edwards nXDS15) als Vorpumpe in Kombination mit einer Titansublimationspumpe (Balzers USP035) erzeugt.

Die Präparationskammer wurde von Kai Schubert im Rahmen seiner Doktorarbeit [233] konstruiert und aufgebaut. Sie wird an der ZAPES III erstmalig im regulären Messbetrieb genutzt. Mit Hilfe eines drehbaren 500 mm Flansches kann die Probe in der Präparationskammer beliebig vor acht frei belegbaren CF150 Flanschen positioniert werden. An die Präparationskammer sind neben einem Transfersystem ein LEED (Omicron Spectaleed), eine Sputtergun (VSW AS10), ein Quadrupolmassenspektrometer (Balzers QMA 125), ein Verdampfer für organische Moleküle und ein Dosiersystem installiert. Die Kombination aus einer Turbomolekularpumpe (Pfeiffer

HiPace 700), der differentiell gepumpten Drehdurchführung und einer Scrollpumpe (Edwards nXDS15) als Vorpumpe ermöglicht eine Präparation der Oberfläche bei einem Druck von $6 \cdot 10^{-11}$ mbar. In Abbildung A.2 ist schematisch die Gesamtanordnung aller Pumpen, Ventile und Druckmesszellen skizziert. Automatisch betätigte Ventile sind rot eingefärbt und mit der verantwortlichen Turbomolekularpumpe mit einer roten Linie verbunden.

Die Mess- und Präparationskammer sind während der Probenpräparation durch ein manuell zu betätigendes Ventil voneinander getrennt. Auf diese Weise kann eine Präparation bei hohen Drücken durchgeführt werden, ohne die Messkammer und den Detektor zu verschmutzen. Die an einem aus unmagnetischen Materialien gebauten Kryostaten gehaltene Probe wird für die Photoemissionsmessungen vom vollständig motorisierten 4-Achsen-Manipulator aus der Präparationsebene durch das nun geöffnete Ventil in die Messkammer vor den Detektor gefahren. Die Probe kann auf dem Probenhalter mit flüssigem Stickstoff und flüssigem Helium gekühlt sowie mit Elektronenstoßheizung geheizt werden.

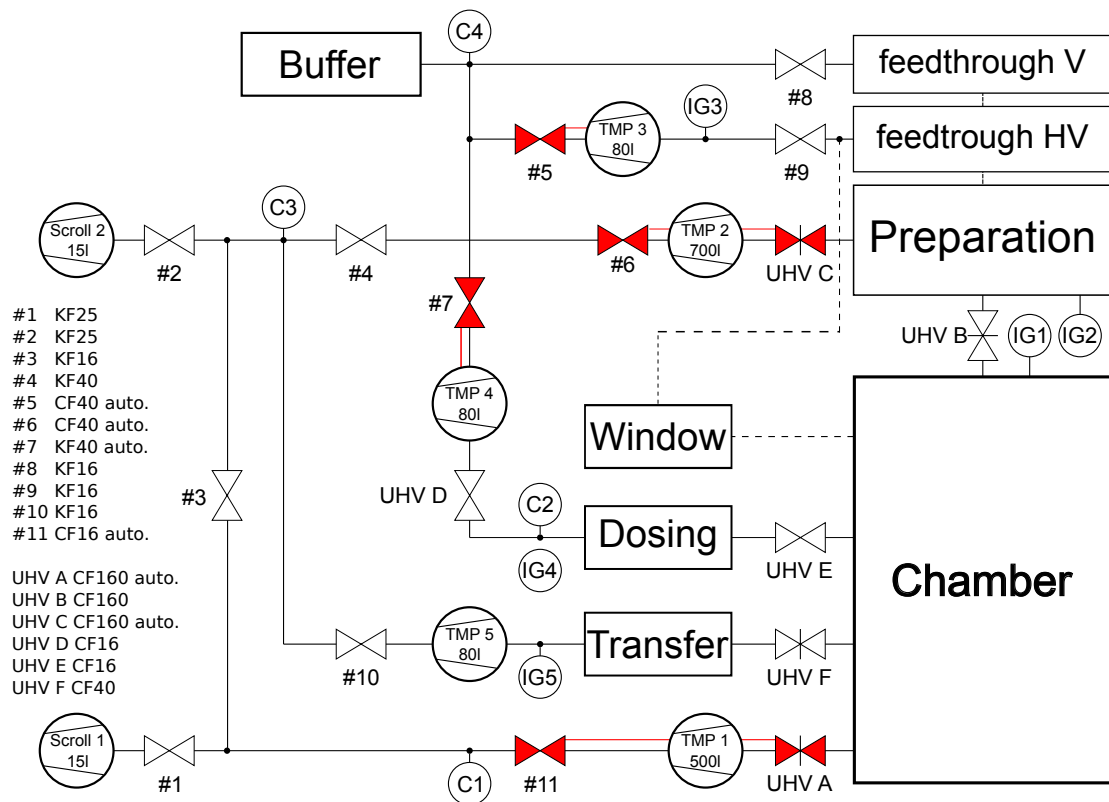


Abb. A.2: Pumpen- und Ventilschema des ZAPES III-Experimentes. Bezeichnungen: #1-#11 Eckventile, UHV A-F Plattenventile, C1-C4 Vorkuumsdruckmessröhren, IG1-5 UHV-Druckmessröhre, TMP 1-5 Turbomolekularpumpe, Scroll 1-2 Scrollpumpe.

A.2 DA30 Elektronenspektrometer

Der im ZAPES III-Experiment verbaute hemisphärische Elektronenanalysator DA30 von VG Scienta ist durch seine hohe Energieauflösung (1,8 meV) und Winkelauflösung ($0,1^\circ$ für einen 0,1 mm Quellfleck) ideal für die winkelaufgelöste Photoemission von Elektronen mit niedrigen kinetischen Energien geeignet. Im Vergleich zu anderen hemisphärischen Analysatoren ist der DA30 in der Lage, Elektronen nicht nur in eine Parallelimpulsrichtung, sondern in einem Kegel mit 30° Öffnungswinkel zu detektieren.

Hemisphärische Detektoren sind aufgrund ihrer Konstruktion mit einem Spalt zwischen Linsensystem und Energiefilter grundsätzlich nur in der Lage, die Elektronenverteilung kontinuierlich in eine Richtung zu messen (siehe Abbildung A.3 (a)). Je nach Größe des verwendeten Spalts wird die Elektronenverteilung in der Richtung senkrecht zum Spalt über einen unterschiedlich großen Bereich aufintegriert. Der DA30 besitzt im Linsensystem eine elektrostatische Ablenkeinheit und kann damit die Elektronenverteilung, wie in Abbildung A.3 (b-c) skizziert, senkrecht zum Spalt zu verschieben. Durch sequentielle Aufnahme für verschiedene Ablenkungen senkrecht zum Spalt kann auf diese Weise die Elektronenverteilung in beide Parallelimpulsrichtungen gemessen werden, ohne die Probe bewegen zu müssen.

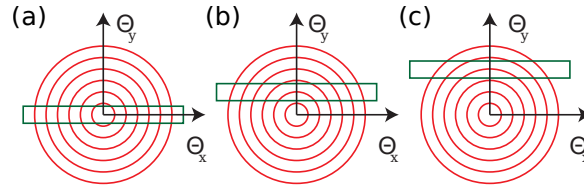


Abb. A.3: (a) Der durch den Spalt abgebildete Winkelbereich ist ohne Ablenkung bei $\theta_y = 0^\circ$ fixiert. (b-c) Die Ablenkeinheit im Linsensystem des DA30 ermöglicht es, den abgebildeten Bereich kontinuierlich in θ_y (und θ_x) um bis zu $\pm 15^\circ$ zu verschieben.

In Abbildung A.4 wurde eine solche Messung beispielhaft am Shockley Oberflächenzustand an der Ag(111) Oberfläche durchgeführt. Teilabbildung (c) zeigt das in θ_x winkelaufgelöste Photoemissionspektrum nach Anregung mit $\hbar\omega = 5,22$ eV Laserimpulsen ohne Ablenkung der Elektronen im Detektor bei $\theta_y = 0^\circ$. Ein solches Spektrum mit dem parabolisch dispergierenden Zustand kann dabei grundsätzlich mit jedem winkelauflösenden hemisphärischen Analysator aufgenommen werden. Die Ablenkeinheit im Linsensystem des DA30 erlaubt, es den Winkel θ_y des Spektrums in diskreten Schritten von -15° bis $+15^\circ$ zu verschieben. Ein Schnitt durch diese Daten für verschiedene θ_y bei konstanter Energie erzeugt das in Teilabbildung (a) gezeigte Spektrum. Die für eine in beide Parallelimpulsrichtungen parabolisch dispergierende Dispersion bei konstanter Energie erwartete kreisrunde Intensitätsverteilung ist im Spektrum deutlich erkennbar. Bei Verwendung ausreichend kleiner Abstände der Messungen in θ_y -Richtung ist das aus diskreten Messungen erstellte Spektrum ent-

lang $\theta_x = 0^\circ$ in Teilabbildung (c) nicht von dem kontinuierlich im Winkel aufgelösten Spektrum in (a) zu unterscheiden.

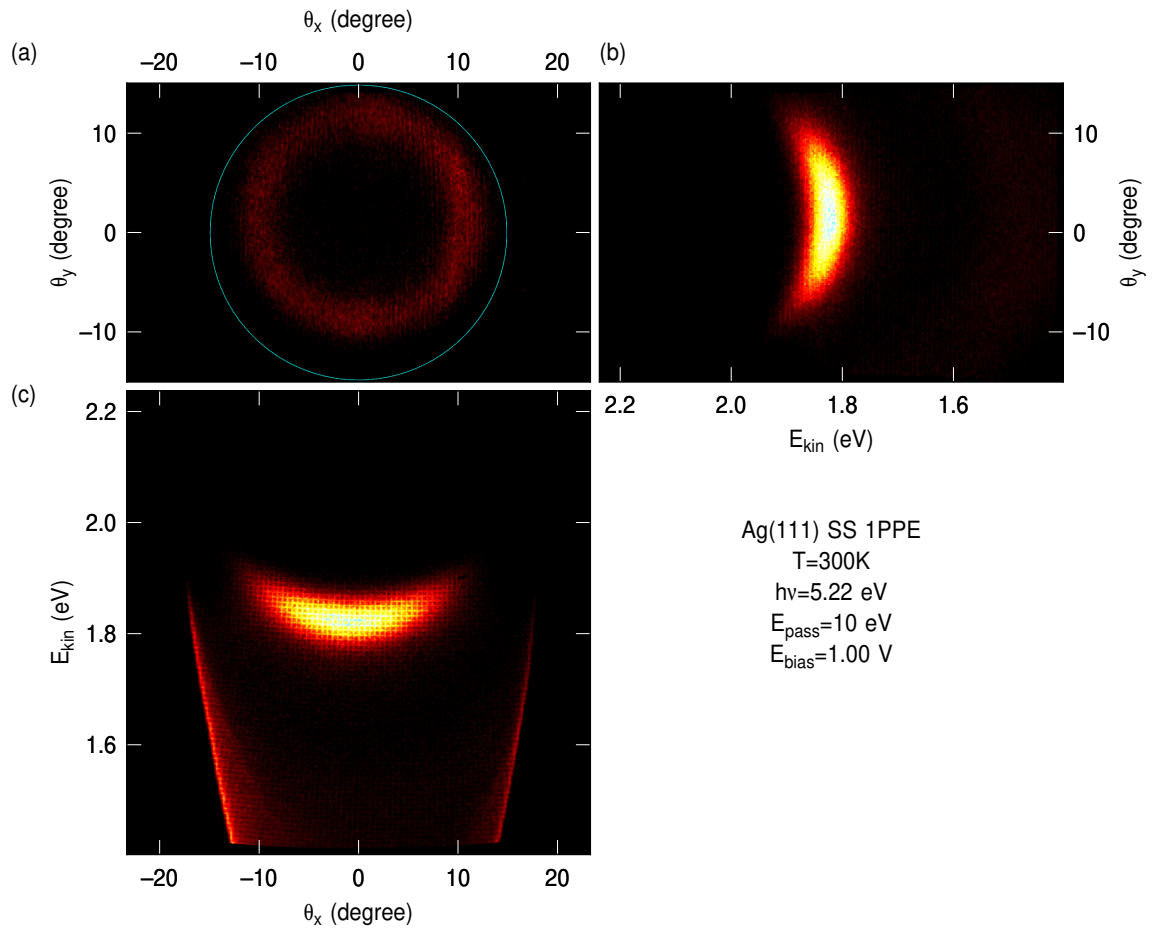


Abb. A.4: Photoemissionsdaten des Shockley-Oberflächenzustands an Ag(111), aufgenommen von J. Gütde (a) Photoemissionsintensität bei konstanter kinetischer Energie in beide Parallelimpulsrichtungen. (b) Energie- und winkelaufgelöstes Spektrum entlang $\theta_x = 0^\circ$. (c) Spektrum ohne Ablenkung der Elektronen im Linsensystem, für entsprechend $\theta_y = 0^\circ$.

A.3 Softwareschnittstelle zur Steuerung des DA30

Zur Ansteuerung und zur Aufnahme von Photoemissionsspektren wird vom Hersteller des DA30 das *SES* Softwarepaket für Windows zur Verfügung gestellt. Für die an der ZAPES III durchgeführten Experimente stellt diese Software aufgrund der Fokussierung auf nicht zeitaufgelöste Experimente eine nur unzureichende Lösung dar. Da im Rahmen der bestehenden Experimente in der Arbeitsgruppe bereits für eine Vielzahl von Geräten Programme zur Ansteuerung und Auswertung existierten, wurde im Rahmen dieser Arbeit mit *ses_juggler* ein neues Messprogramm für Linux-Systeme entwickelt, dass die Ansteuerung des Detektors mit diesen verbindet. Für die Kommunikation zwischen den Systemen läuft auf dem mit dem Detektor verbundenen Windows-PC das Programm *SesServer*. Dieses Programm bildet die von Scienta zur Fernsteuerung des Detektors freigegebenen Funktionen des *SES Wrapper* auf einem CORBA Server ab. Die nicht direkt zugänglichen Funktionen zur Steuerung der DA30-Funktionen werden unter Umgehung des *SES Wrapper* mit direktem Zugriff auf die entsprechenden Bibliotheken ebenfalls vom CORBA Server zur Verfügung gestellt.

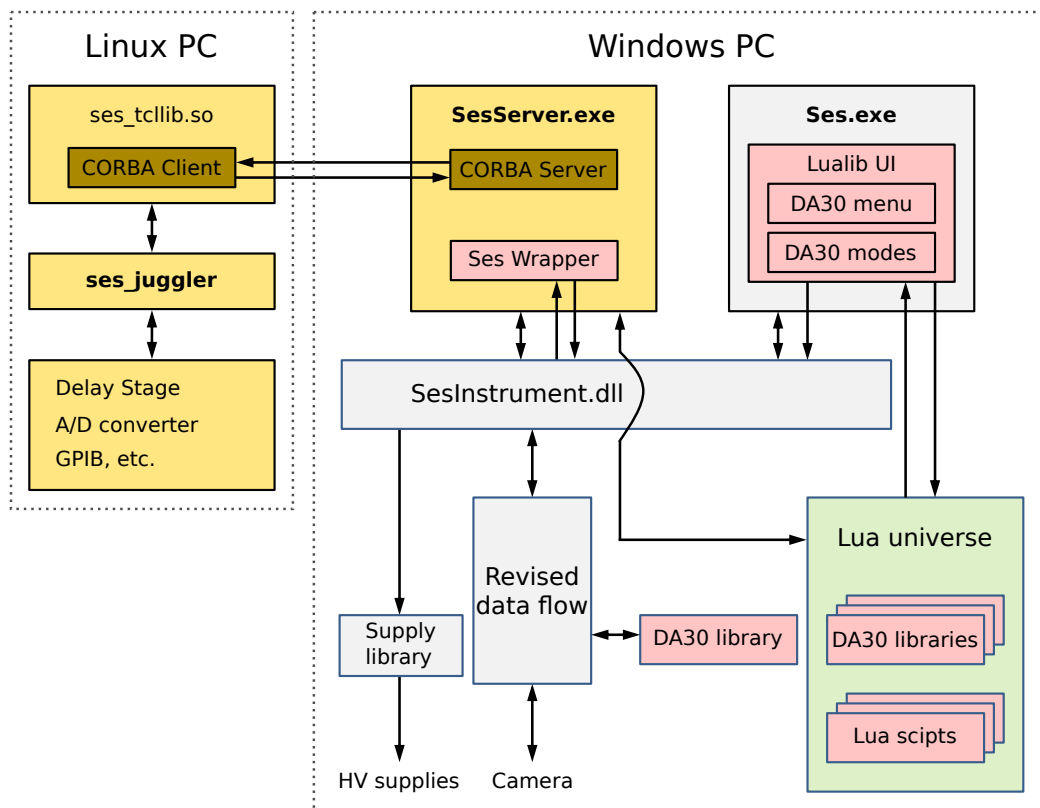


Abb. A.5: Schema der einzelnen Teilmodule und des zwischen ihnen stattfindenden Datenaustauschs. Die gelb hinterlegten Module wurden im Rahmen dieser Arbeit erstellt. (Abbildungsteile aus [234])

Der Client überführt in der *ses_tcllib.so*-Bibliothek die vom CORBA Server zur Verfügung gestellten Funktionen in Tcl Funktionen, die wiederum vom, in Tcl geschriebenen, *ses_juggler*-Messprogramm aufgerufen werden können. Auf diese Weise ist es möglich, vom *ses_juggler*-Messprogramm aus sämtliche für das Experiment notwendigen Einstellungen am Detektor vorzunehmen.

Die vom Detektor gemessenen Spektren müssen für die Auswertung und Analyse vom Server zum Client übertragen werden. Eine Übertragung der 8 MiB großen Spektren zwischen beiden Computern führt selbst bei Verwendung eines Gigabit-Netzwerks mit einer durchschnittlichen Dauer von 90 ms zu einer deutlichen Verzögerung im Programmablauf. Aus diesem Grund werden die zu übertragenden Daten vor der Übermittlung mit lz4 komprimiert (typische Größe nach Kompression: 500 KiB) und nach der Übertragung wieder entpackt. Der Übertragungsvorgang kann auf diese Weise um einen Faktor 6 auf weniger als 15 ms beschleunigt werden.

Die Größe der einzelnen Spektren von 8 MiB stellt auch im Hinblick auf die Speicherung der Daten eine Herausforderung dar, da insbesondere in zeitaufgelösten Messungen mehrere Hunderte bis Tausende einzelne Spektren aufgenommen und gespeichert werden müssen. Die Dynamik innerhalb eines typischen Spektrums ist so klein, dass die von *SES* durchgeführte Kodierung der Daten als 8 Byte Fließkommazahlen nicht notwendig ist. Die Speicherung der Daten erfolgt daher als 16 Bit Graustufen PNG Datei. Die Daten werden hierzu in einen Bereich von 0 bis 65535 skaliert und anschließend diskretisiert. Der durch die Diskretisierung entstehende relative Fehler liegt typischerweise bei ungefähr $2 \cdot 10^{-5}$ und ist damit vernachlässigbar klein. Die auf diese Weise umgewandelten Daten werden mit zusätzlichen Informationen (unter anderem Linsen-Modus und kinetische Energie) in eine PNG Bilddatei geschrieben. Die auf diese Weise gespeicherten Bilder besitzen eine Größe im Bereich um 500 KiB und können mit üblichen Bildbearbeitungsprogrammen weiterverarbeitet werden.

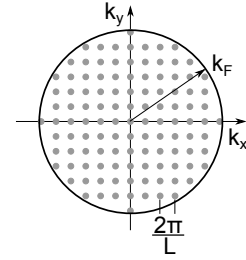
Anhang B

Berechnung des Photostroms nach Intrabandbeschleunigung

Dieser Abschnitt leitet den Zusammenhang zwischen gemessener Energieverschiebung $\Delta\varepsilon$ der Verteilungsfunktionen im Dirac-Kegel eines topologischen Isolators und der daraus resultierenden Stromdichte j her.

Die Herleitung der Zustandsdichte in einem Dirac-Kegel erfolgt über die Summation der einzelnen Zustände. Der Entartungsgrad r gibt die Anzahl der Elektronen pro Zustand an.

$$\begin{aligned} N_{2D} &= r \cdot \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{k_F} k dk \frac{1}{\left(\frac{2\pi}{L}\right)^2} \\ n = \frac{N}{A} &= r \frac{1}{(2\pi)^2} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{k_F} k dk \\ &= r \frac{1}{(2\pi)^2} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\varepsilon_F} k \frac{\varepsilon}{v_F^2} d\varepsilon \end{aligned}$$



Im topologischen Oberflächenzustand ist der Entartungsgrad $r = 1$ und die Fermienergie ε_F ist konstant. Für die Teilchendichte n und die Zustandsdichte $dn/d\varepsilon$ folgt somit

$$\begin{aligned} n &= r \frac{1}{4\pi} \frac{\varepsilon_F^2}{v_F^2} \\ \frac{dn}{d\varepsilon} &= D(\varepsilon) = r \frac{1}{2\pi} \frac{\varepsilon_F}{v_F^2}. \end{aligned}$$

Stromdichte im Dirac-Kegel

Die Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld führt zu einer Beschleunigung der Elektronen im linear dispergierenden Oberflächenzustand des topologischen Isolators. Die Richtung eines einzelnen Elektrons innerhalb des Dirac-Kegels wird durch den Winkel ϕ bezüglich der k_x -Achse beschrieben. Die fest vorgegebene Richtung ϕ eines Elektrons führt dazu, dass ein in y -Richtung ausgerichtetes elektrisches Feld der

Amplitude E_{THz} mit einer effektiven Feldstärke $E_{\text{THz}} \cdot \sin(\phi)$ auf das Elektron wirkt. Die Beschleunigung der Elektronen und die daraus resultierende Verschiebung der Ladungsträger skaliert daher wie $\Delta\varepsilon \cdot \sin(\phi)$. Anschaulich führt dies, wie in Abbildung B.1 skizziert, zu einer Verkipfung der lokalen Fermienergie der Elektronenverteilung (rote Linie) im Dirac-Kegel. Der Unterschied zwischen verschobener und der Fermienergie im Gleichgewicht (schwarze Linie) ist in Feldrichtung für $\phi = 90^\circ$ und 270° am stärksten. Genau senkrecht zum Feld in k_x -Richtung werden die Elektronen nicht beschleunigt und entsprechend auch nicht im Dirac-Kegel verschoben. Aufgrund der Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld ergibt sich daher eine einzählige Symmetrie der Verschiebung. Im Photoemissionsexperiment wird die verkippte Verteilung entlang der k_y -Richtung vermessen. Die aus den Spektren bestimmte Aufspaltung $2\Delta\varepsilon$ entspricht daher dem maximalen Unterschied der Verteilungen in $\pm k_y$ -Richtung.

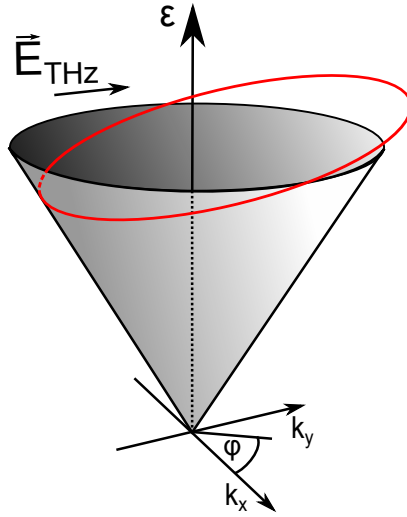


Abb. B.1: Schema des bis zur Fermienergie gefüllten Dirac-Kegels. Die im elektrischen Feld \vec{E}_{THz} in k_y -Richtung beschleunigten Elektronen verschieben die lokale Fermienergie (rote Linie). Die Elektronen werden je nach Richtung ϕ entweder beschleunigt ($0^\circ < \phi < 180^\circ$) und damit zu höheren Energien ε verschoben oder abgebremst ($180^\circ < \phi < 360^\circ$).

Die Verschiebung der Elektronen innerhalb des Dirac-Kegels führt zu einer Veränderung der Geschwindigkeitsverteilung im Oberflächenzustand. Für den in Abbildung B.1 skizzierten Fall bewegen sich mehr Elektronen in k_y - als in $-k_y$ -Richtung. Die Elektronen im Dirac-Kegel besitzen daher eine von Null verschiedene Gesamtgeschwindigkeit und es fließt ein Strom im Oberflächenzustand. Aufgrund der Symmetrie der verschobenen Verteilung findet sich zu jedem Elektron ϕ' ein Elektron bei $180^\circ - \phi'$ mit gleicher Geschwindigkeit in y -Richtung und entgegengesetzter Geschwindigkeit in x -Richtung. Die Bewegung in x -Richtung kompensiert sich daher in Summe und es fließt kein Strom in x -Richtung. Der Beitrag zum Strom in y -Richtung eines jeden Elektrons ist proportional zu $v_F \cdot \sin(\phi)$.

Zur Bestimmung der Stromdichte j wird der Beitrag jedes einzelnen verschobenen Elektrons im Dirac-Kegel aufsummiert. Die Berechnung aus der Zustandsdichte $D(\varepsilon)$ wird für beschleunigte Elektronen mit $0^\circ < \phi < 180^\circ$ (k_+) und abgebremste Elektronen $180^\circ < \phi < 360^\circ$ (k_-) separat durchgeführt. In die Berechnung werden die nicht zum Strom beitragenden Elektronen unterhalb der Energie $\varepsilon_F - \Delta\varepsilon$ nicht mit einbezogen.

$$\begin{aligned} n_{\text{Strom},k_+} &= \frac{1}{e v_F} j_{k_+} = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_0^\pi \sin \phi \, d\phi \int_{\varepsilon_F}^{\varepsilon_F + \Delta\varepsilon \sin \phi} \frac{\varepsilon}{\hbar^2 v_F^2} \, d\varepsilon \\ &= \frac{1}{8\pi^2} \frac{1}{\hbar^2 v_F^2} \int_0^\pi \sin \phi \left[(\varepsilon_F + \Delta\varepsilon \sin \phi)^2 - \varepsilon_F^2 \right] d\phi \\ &= \frac{1}{8\pi^2} \frac{1}{\hbar^2 v_F^2} \left(\frac{4\Delta\varepsilon^2}{3} + \pi \varepsilon_F \Delta\varepsilon \right) \end{aligned}$$

analog dazu folgt

$$\begin{aligned} n_{\text{Strom},k_-} &= \frac{1}{e v_F} j_{k_-} = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_\pi^{2\pi} \sin \phi \, d\phi \int_{\varepsilon_F}^{\varepsilon_F + \Delta\varepsilon \sin \phi} \frac{\varepsilon}{\hbar^2 v_F^2} \, d\varepsilon \\ &= \frac{1}{8\pi^2} \frac{1}{\hbar^2 v_F^2} \left(-\frac{4\Delta\varepsilon^2}{3} + \pi \varepsilon_F \Delta\varepsilon \right) \end{aligned}$$

und somit

$$n_{\text{Strom,effektiv}} = \frac{1}{e v_F} j_x = \frac{1}{e v_F} (j_{k_+} + j_{k_-}) = \frac{1}{4\pi} \frac{1}{\hbar^2 v_F^2} \varepsilon_F \Delta\varepsilon.$$

Der Gesamtstrom j_y in y -Richtung kann anschließend aus der Teilchendichte über

$$\begin{aligned} j_y &= -e v_F \frac{\varepsilon_F}{4\pi \hbar^2 v_F^2} \Delta\varepsilon \\ &= -e v_F n \frac{\Delta k}{k_F} \text{ mit } n = \frac{k_F^2}{4\pi} \end{aligned} \tag{B.1}$$

mit der gemessenen Aufspaltung der Verteilungsfunktionen in Energierichtung $\Delta\varepsilon$ oder in Parallelimpulsrichtung Δk berechnet werden.

Für die an Bi_2Te_3 durchgeführten Photoemissionsmessungen (siehe Abbildung 6.6 und 6.8) ergibt sich eine maximale Stromdichte j von

$$\begin{aligned} j &= -e v_F k_F \frac{\Delta k}{4\pi} \\ &= -e v_F k_F \frac{\Delta\varepsilon}{\hbar v_F 4\pi} = 2,0 \frac{\text{A}}{\text{m}}. \end{aligned}$$

Die Fermigeschwindigkeit $v_F = 4,1 \text{ \AA/fs}$ und der Fermiwellenvektor $k_F = 0,075 \text{ \AA}^{-1}$ wurden aus den experimentellen Photoemissionsdaten gewonnen. Die maximale Verschiebung der Verteilungsfunktion beträgt $2\Delta\varepsilon = 27,2 \text{ meV}$ in Energierichtung und $\Delta k = \Delta\varepsilon/(\hbar v_F) = 0,005 \text{ \AA}$ in Parallelimpulsrichtung.

Anhang C

Numerische Integration der Boltzmann-Gleichung

Die Lösung der in Abschnitt 2.3.2 präsentierten Boltzmann-Gleichung erfolgt numerisch mittels des Crank-Nicolson-Verfahren [235]. Es basiert auf der Mittelwertbildung des Euler-Vorwärtsverfahrens und des Euler-Rückwärtsverfahrens. Im Gegensatz zum Eulerverfahren ist es ohne Bedingungen numerisch stabil und es handelt sich um ein implizites Verfahren. Das lineare Gleichungssystem, das zur Integration der Differentialgleichung gelöst werden muss, hat im hier vorliegenden Fall eine tridiagonale Form und ist dadurch effektiv numerisch lösbar.

Im Rahmen der Lösung mit Hilfe des Crank-Nicolson-Verfahrens werden die partiellen Ableitungen der Funktion $u(x,t) = u_x^t$ durch folgende finite Differenzen ersetzt:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{u_i^{t+1} - u_i^t}{\Delta t} \quad (\text{C.1})$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} = \frac{1}{2} \left(\frac{u_{i+1}^{t+1} - u_{i-1}^{t+1}}{2 \Delta x} + \frac{u_{i+1}^t - u_{i-1}^t}{2 \Delta x} \right) \quad (\text{C.2})$$

$$\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} = \frac{1}{2(\Delta x)^2} \left((u_{i+1}^{t+1} - 2u_i^{t+1} + u_{i-1}^{t+1}) + (u_{i+1}^t - 2u_i^t + u_{i-1}^t) \right) \quad (\text{C.3})$$

Für die Boltzmann-Gleichung der Intradbandbeschleunigung im Dirac-Kegel nach Gleichung 2.17

$$\frac{\partial f_{\pm k}(k,t)}{\partial t} + \frac{e}{\hbar} E(t) \nabla_k f_{\pm k}(k,t) = \frac{1}{\tau_e} (-f_{\pm k}(k,t) + f_{\mp k}(k,t)) - \frac{f_{\pm k}(k,t) - f^0}{\tau_i} \quad (\text{C.4})$$

ergibt sich für die Verteilungsfunktion g_k^{t+1} am Ort k und zum Zeitpunkt $t+1$

$$\begin{aligned} & g_k^{t+1} + \alpha \left(-E(t+1)g_{k+1}^{t+1} + E(t+1)g_{k-1}^{t+1} \right) \\ &= g_k^t + \alpha \left(E(t)g_{k+1}^t - E(t)g_{k-1}^t \right) + \frac{-g_k^t + h_k^t}{\tau_e} - \frac{g_k^t - g_k^0}{\tau_i} \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

mit den Verteilungsfunktionen $g_k^t \hat{=} f_{+k}(k,t)$ und $h_k^t \hat{=} f_{-k}(k,t)$, dem elektrischen Feld $E(t)$ des THz-Impulses und $\alpha = \frac{e}{\hbar} \frac{\Delta t}{4 \Delta k}$. Der Wert am Ort k zum Zeitpunkt t hängt

damit von den Werten an den Orten $k - 1$, k , $k + 1$ an den Zeitpunkten t und $t + 1$ ab und die Lösung der partiellen Differentialgleichung erfolgt implizit.

Das lineare Gleichungssystem wird im Bereich von $k = -0,25 \dots 0,25 \text{ \AA}^{-1}$ mit $\Delta k = 0,001 \text{ \AA}^{-1}$ Auflösung und konstanten Randbedingungen von $f_{\pm k}(-0,25 \text{ \AA}^{-1}) = 1$ und $f_{\pm k}(+0,25 \text{ \AA}^{-1}) = 0$ integriert, die verwendeten Matrizen haben die Dimension 501×501 . Die Schrittweite der Zeitintegration ist auf die Frequenz des elektrischen Feldes und die Zerfallszeiten im Pikosekundenbereich angepasst und beträgt $\Delta t = 1 \text{ fs}$. Die Integration wird mit einem selbst geschriebenen Pythonprogramm durchgeführt, zum Lösen des linearen Gleichungssystems wird auf Routinen in SciPy [224] zurückgegriffen. Die Aufspaltung der Verteilungsfunktionen wird wie an den experimentellen Photoemissionsdaten (siehe Abschnitt 6.2.1) durch Integration von $f_{\pm k}$ und anschließende Subtraktion bestimmt. Für einen Vergleich der Simulation mit den experimentell ermittelten Verteilungsfunktionen muss zusätzlich die endliche experimentelle Auflösung berücksichtigt werden. Hierzu wird die Lösung der Differentialgleichung mit einer Gaußverteilung der vollen Halbwertbreite von 45 meV gefaltet.

Literaturverzeichnis

- [1] J. M. Kosterlitz and D. J. Thouless, *Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems*, J. Phys. C. Solid State **6**, 1181 (1973).
- [2] K. v. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper, *New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance*, Phys. Rev. Lett. **45**, 494 (1980).
- [3] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs, *Quantized Hall Conductance in a Two-Dimensional Periodic Potential*, Phys. Rev. Lett. **49**, 405 (1982).
- [4] F. D. M. Haldane, *Model for a Quantum Hall Effect without Landau Levels: Condensed-Matter Realization of the Parity Anomaly*, Phys. Rev. Lett. **61**, 2015 (1988).
- [5] C. L. Kane and E. J. Mele, *$Z(2)$ Topological Order and the Quantum Spin Hall Effect*, Phys. Rev. Lett. **95**, 146802 (2005).
- [6] D. Hsieh, Y. Xia, D. Qian, L. Wray, J. H. Dil, F. Meier, J. Osterwalder, L. Patthey, J. G. Checkelsky, N. P. Ong, A. V. Fedorov, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *A Tunable Topological Insulator in the Spin Helical Dirac Transport Regime*, Nature **460**, 1101 (2009).
- [7] Y. Xia, D. Qian, D. Hsieh, L. Wray, A. Pal, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *Observation of a large-gap topological-insulator class with a single Dirac cone on the surface*, Nat. Phys. **5**, 398 (2009).
- [8] Y. L. Chen, J. G. Analytis, J. H. Chu, Z. K. Liu, S. K. Mo, X. L. Qi, H. J. Zhang, D. H. Lu, X. Dai, Z. Fang, S. C. Zhang, I. R. Fisher, Z. Hussain, and Z. X. Shen, *Experimental Realization of a Three-Dimensional Topological Insulator, Bi_2Te_3* , Science **325**, 178 (2009).
- [9] D. Hsieh, Y. Xia, D. Qian, L. Wray, F. Meier, J. H. Dil, J. Osterwalder, L. Patthey, A. V. Fedorov, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *Observation of Time-Reversal-Protected Single-Dirac-Cone Topological-Insulator States in Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3* , Phys. Rev. Lett. **103**, 146401 (2009).

- [10] C. Seibel, H. Maass, M. Ohtak, S. Fiedler, C. Junger, C. H. Min, H. Bentmann, K. Sakamoto, and F. Reinert, *Single Dirac Cone on the Cs-Covered Topological Insulator Surface $Sb_2Te_3(0001)$* , Phys. Rev. B **86**, 161105 (2012).
- [11] C. Pauly, G. Bihlmayer, M. Liebmann, M. Grob, A. Georgi, D. Subramaniam, M. R. Scholz, J. Sánchez-Barriga, A. Varykhalov, S. Blügel, O. Rader, and M. Morgenstern, *Probing two topological surface bands of Sb_2Te_3 by spin-polarized photoemission spectroscopy*, Phys. Rev. B **86**, 235106 (2012).
- [12] J. Reimann, J. Güdde, K. Kuroda, E. V. Chulkov, and U. Höfer, *Spectroscopy and dynamics of unoccupied electronic states of the topological insulators Sb_2Te_3 and Sb_2Te_2S* , Phys. Rev. B **90**, 081106(R) (2014).
- [13] J. Güdde, M. Rohleder, T. Meier, S. W. Koch, and U. Höfer, *Time-Resolved Investigation of Coherently Controlled Electric Currents at a Metal Surface*, Science **318**, 1287 (2007).
- [14] J. A. Sobota, S. Yang, J. G. Analytis, Y. L. Chen, I. R. Fisher, P. S. Kirchmann, and Z. X. Shen, *Ultrafast Optical Excitation of a Persistent Surface-State Population in the Topological Insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. Lett. **108**, 117403 (2012).
- [15] Y. H. Wang, D. Hsieh, E. J. Sie, H. Steinberg, D. R. Gardner, Y. S. Lee, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, *Measurement of Intrinsic Dirac Fermion Cooling on the Surface of the Topological Insulator Bi_2Se_3 Using Time-Resolved and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. **109**, 127401 (2012).
- [16] A. Crepaldi, B. Ressel, F. Cilento, M. Zacchigna, C. Grazioli, H. Berger, P. Bugnon, K. Kern, M. Grioni, and F. Parmigiani, *Ultrafast Photodoping and Effective Fermi-Dirac Distribution of the Dirac Particles in Bi_2Se_3* , Phys. Rev. B **86**, 205133 (2012).
- [17] M. Hajlaoui, E. Papalazarou, J. Mauchain, G. Lantz, N. Moisan, D. Boschetto, Z. Jiang, I. Miotkowski, Y. P. Chen, A. Taleb-Ibrahimi, L. Perfetti, and M. Marsi, *Ultrafast Surface Carrier Dynamics in the Topological Insulator Bi_2Te_3* , Nano Lett. **12**, 3532 (2012).
- [18] J. A. Sobota, S. L. Yang, A. F. Kemper, J. J. Lee, F. T. Schmitt, W. Li, R. G. Moore, J. G. Analytis, I. R. Fisher, P. S. Kirchmann, T. P. Devereaux, and Z. X. Shen, *Direct Optical Coupling to an Unoccupied Dirac Surface State in the Topological Insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. Lett. **111**, 136802 (2013).
- [19] D. Niesner, S. Otto, V. Hermann, T. Fauster, T. V. Menshchikova, S. V. Ere-meev, Z. S. Aliev, I. R. Amiraslanov, M. B. Babanly, P. M. Echenique, and E. V.

- Chulkov, *Bulk and Surface Electron Dynamics in a p-Type Topological Insulator SnSb_2Te_4* , Phys. Rev. B **89**, 081404 (2014).
- [20] L.-G. Zhu, B. Kubera, K. Fai Mak, and J. Shan, *Effect of Surface States on Terahertz Emission from the Bi_2Se_3 Surface*, Sci. Rep. **5**, 10308 (2015).
- [21] K. Kuroda, J. Reimann, J. Gddde, U. Hfer, and P. M. Echenique, *Generation of transient photocurrents in the topological surface state of Sb_2Te_3 by direct optical excitation with mid-infrared pulses*, Phys. Rev. Lett. **116**, 076801 (2016).
- [22] K. Kuroda, J. Reimann, J. Gddde, and U. Hfer, *Momentum space view of the ultrafast dynamics of surface photocurrents on topological insulators*, Proc. SPIE **10102**, 101020Q (2017).
- [23] K. Kuroda, J. Reimann, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, J. Gddde, and U. Hfer, *Ultrafast energy- and momentum-resolved surface Dirac photocurrents in the topological insulator Sb_2Te_3* , Phys. Rev. B **95**, 081103(R) (2017).
- [24] T. Fauster, M. Weinelt, and U. Hfer, *Quasi-elastic scattering of electrons in image-potential states*, Prog. Surf. Sci. **82**, 224 (2007).
- [25] J. Reimann, S. Schlauderer, C. P. Schmid, F. Langer, S. Baierl, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, C. Lange, J. Gddde, U. Hfer, and R. Huber, *Subcycle observation of lightwave-driven Dirac currents in a topological surface band*, Nature **562**, 396 (2018).
- [26] B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S. C. Zhang, *Quantum Spin Hall Effect and Topological Phase Transition in HgTe Quantum Wells*, Science **314**, 1757 (2006).
- [27] L. Fu and C. L. Kane, *Topological insulators with inversion symmetry*, Phys. Rev. B **76**, 045302 (2007).
- [28] L. Fu, C. L. Kane, and E. J. Mele, *Topological Insulators in Three Dimensions*, Phys. Rev. Lett. **98**, 106803 (2007).
- [29] M. Knig, S. Wiedmann, C. Brne, A. Roth, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, X.-L. Qi, and S.-C. Zhang, *Quantum Spin Hall Insulator State in HgTe Quantum Wells*, Science **318**, 766 (2007).
- [30] D. Hsieh, D. Qian, L. Wray, Y. Xia, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *A topological Dirac insulator in a quantum spin Hall phase*, Nature **452**, 970 (2008).

- [31] T. Zhang, P. Cheng, X. Chen, J. F. Jia, X. C. Ma, K. He, L. L. Wang, H. J. Zhang, X. Dai, Z. Fang, X. C. Xie, and Q. K. Xue, *Experimental Demonstration of Topological Surface States Protected by Time-Reversal Symmetry*, Phys. Rev. Lett. **103**, 266803 (2009).
- [32] M. Z. Hasan and C. L. Kane, *Colloquium: Topological Insulators*, Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).
- [33] X.-L. Qi and S.-C. Zhang, *Topological insulators and superconductors*, Rev. Mod. Phys. **83**, 1057 (2011).
- [34] S.-Q. Shen, *Topological Insulators: Dirac Equation in Condensed Matter* (Springer, Singapore, 2012).
- [35] W. Shockley, *On the Surface States Associated with a Periodic Potential*, Phys. Rev. **56**, 317 (1939).
- [36] C. Kane and J. Moore, *Topological Insulators*, Phys. World **24**, 32 (2011).
- [37] H. J. Zhang, C. X. Liu, X. L. Qi, X. Dai, Z. Fang, and S. C. Zhang, *Topological Insulators in Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 and Sb_2Te_3 with a Single Dirac Cone on the Surface*, Nat. Phys. **5**, 438 (2009).
- [38] A. L. Jain, *Temperature Dependence of the Electrical Properties of Bismuth-Antimony Alloys*, Phys. Rev. **114**, 1518 (1959).
- [39] D. Hsieh, Y. Xia, L. Wray, D. Qian, A. Pal, J. H. Dil, J. Osterwalder, F. Meier, G. Bihlmayer, C. L. Kane, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *Observation of Unconventional Quantum Spin Textures in Topological Insulators*, Science **323**, 919 (2009).
- [40] M. Bianchi, R. C. Hatch, D. Guan, T. Planke, J. Mi, B. B. Iversen, and P. Hofmann, *The electronic structure of clean and adsorbate-covered Bi_2Se_3 : an angle-resolved photoemission study*, Semicond. Sci. Technol. **27**, 124001 (2012).
- [41] J. Navrátil, J. Horák, T. Plecháček, S. Kamba, P. Lošt'ák, J. S. Dyck, W. Chen, and C. Uher, *Conduction band splitting and transport properties of Bi_2Se_3* , J. Solid State Chemistry France **177**, 1704 (2004).
- [42] B. Wiendlocha, *Resonant Levels, Vacancies, and Doping in Bi_2Te_3 , Bi_2Te_2Se , and Bi_2Se_3 Tetradymites*, J. Electron. Mater. **45**, 3515 (2016).
- [43] H. Zhang, C.-X. Liu, and S.-C. Zhang, *Spin-Orbital Texture in Topological Insulators*, Phys. Rev. Lett. **111**, 066801 (2013).

- [44] Z.-H. Zhu, C. N. Veenstra, S. Zhdanovich, M. P. Schneider, T. Okuda, K. Miyamoto, S.-Y. Zhu, H. Namatame, M. Taniguchi, M. W. Haverkort, I. S. Elfimov, and A. Damascelli, *Photoelectron Spin-Polarization Control in the Topological Insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. Lett. **112**, 076802 (2014).
- [45] Y. Zhang, K. He, C.-Z. Chang, C.-L. Song, L.-L. Wang, X. Chen, J.-F. Jia, Z. Fang, X. Dai, W.-Y. Shan, S.-Q. Shen, Q. Niu, X.-L. Qi, S.-C. Zhang, X.-C. Ma, and Q.-K. Xue, *Crossover of the three-dimensional topological insulator Bi_2Se_3 to the two-dimensional limit*, Nat. Phys. **6**, 584 (2010).
- [46] Z. Xie, S. He, C. Chen, Y. Feng, H. Yi, A. Liang, L. Zhao, D. Mou, J. He, Y. Peng, X. Liu, Y. Liu, G. Liu, X. Dong, L. Yu, J. Zhang, S. Zhang, Z. Wang, F. Zhang, F. Yang, Q. Peng, X. Wang, C. Chen, Z. Xu, and X. J. Zhou, *Orbital-selective spin texture and its manipulation in a topological insulator*, Nature Commun. **5**, 3382 (2014).
- [47] G. Wang, , X. Zhu, J. Wen, X. Chen, K. He, L. Wang, X. Ma, Y. Liu, X. Dai, Z. Fang, J. Jia, and Q. Xue, *Atomically smooth ultrathin films of topological insulator Sb_2Te_3* , Nano Res. **3**, 874 (2010).
- [48] S. J. Park and R. E. Palmer, *Acoustic Plasmon on the $Au(111)$ Surface*, Phys. Rev. Lett. **105**, 016801 (2010).
- [49] K. Kuroda, K. Yaji, M. Nakayama, A. Harasawa, Y. Ishida, S. Watanabe, C.-T. Chen, T. Kondo, F. Komori, and S. Shin, *Coherent control over three-dimensional spin polarization for the spin-orbit coupled surface state of Bi_2Se_3* , Phys. Rev. B **94**, 165162 (2016).
- [50] Y. L. Chen, J. H. Chu, J. G. Analytis, Z. K. Liu, K. Igarashi, H. H. Kuo, X. L. Qi, S. K. Mo, R. G. Moore, D. H. Lu, M. Hashimoto, T. Sasagawa, S. C. Zhang, I. R. Fisher, Z. Hussain, and Z. X. Shen, *Massive Dirac Fermion on the Surface of a Magnetically Doped Topological Insulator*, Science **329**, 659 (2010).
- [51] M. Bianchi, R. C. Hatch, J. L. Mi, B. B. Iversen, and P. Hofmann, *Simultaneous Quantization of Bulk Conduction and Valence States through Adsorption of Nonmagnetic Impurities on Bi_2Se_3* , Phys. Rev. Lett. **107**, 086802 (2011).
- [52] A. Herdt, L. Plucinski, G. Bihlmayer, G. Mussler, S. Doring, J. Krumrain, D. Grutzmacher, S. Blugel, and C. M. Schneider, *Spin-Polarization Limit in Bi_2Te_3 Dirac Cone Studied by Angle- and Spin-Resolved Photoemission Experiments and Ab Initio Calculations*, Phys. Rev. B **87**, 035127 (2013).
- [53] D. Hsieh, F. Mahmood, J. W. McIver, D. R. Gardner, Y. S. Lee, and N. Gedik, *Selective Probing of Photoinduced Charge and Spin Dynamics in the Bulk and Surface of a Topological Insulator*, Phys. Rev. Lett. **107**, 077401 (2011).

- [54] K. Miyamoto, A. Kimura, T. Okuda, H. Miyahara, K. Kuroda, H. Namatame, M. Taniguchi, S. V. Eremeev, T. V. Menshchikova, E. V. Chulkov, K. A. Kokh, and O. E. Tereshchenko, *Topological Surface States with Persistent High Spin Polarization across the Dirac Point in $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ and $\text{Bi}_2\text{Se}_2\text{Te}$* , Phys. Rev. Lett. **109**, 166802 (2012).
- [55] S. Souma, K. Kosaka, T. Sato, M. Komatsu, A. Takayama, T. Takahashi, M. Kriener, K. Segawa, and Y. Ando, *Direct Measurement of the out-of-Plane Spin Texture in the Dirac-Cone Surface State of a Topological Insulator*, Phys. Rev. Lett. **106**, 216803 (2011).
- [56] T. Okuda and A. Kimura, *Spin- and Angle-Resolved Photoemission of Strongly Spin-Orbit Coupled Systems*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 021002 (2013).
- [57] J. Horák, Z. Starý, and J. Klikorka, *Relations between Structure, Bonding, and Nature of Point Defects in Layered Crystals of Tetradymite Structure*, Phys. Stat. Sol. (b) **147**, 501 (1988).
- [58] J. Zhang, C.-Z. Chang, Z. Zhang, J. Wen, X. Feng, K. Li, M. Liu, K. He, L. Wang, X. Chen, Q.-K. Xue, X. Ma, and Y. Wang, *Band structure engineering in $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ ternary topological insulators*, Nature Commun. **2**, 574 (2011).
- [59] J. Kellner, M. Eschbach, J. Kampmeier, M. Lanius, E. Mlynczak, G. Mussler, B. Holländer, L. Plucinski, M. Liebmann, D. Grützmacher, C. M. Schneider, and M. Morgenstern, *Tuning the Dirac point to the Fermi level in the ternary topological insulator $(\text{Bi}_{(1-x)}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$* , Appl. Phys. Lett. **107**, 251603 (2015).
- [60] C. Weyrich, M. Drögeler, J. Kampmeier, M. Eschbach, G. Mussler, T. Merzenich, T. Stoica, I. E. Batov, J. Schubert, L. Plucinski, B. Beschoten, C. M. Schneider, C. Stampfer, D. Grützmacher, and T. Schäpers, *Growth, characterization, and transport properties of ternary $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ topological insulator layers*, J. Phys.-Condens. Mat. **28**, 495501 (2016).
- [61] M. Neupane, S.-Y. Xu, L. A. Wray, A. Petersen, R. Shankar, N. Alidoust, C. Liu, A. Fedorov, H. Ji, J. M. Allred, Y. S. Hor, T.-R. Chang, H.-T. Jeng, H. Lin, A. Bansil, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *Topological surface states and Dirac point tuning in ternary topological insulators*, Phys. Rev. B **85**, 235406 (2012).
- [62] K. Sumida, Y. Ishida, S. Zhu, M. Ye, A. Pertsova, C. Triola, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. V. Balatsky, S. Shin, and A. Kimura, *Prolonged duration of nonequilibrated Dirac fermions in neutral topological insulators*, Sci. Rep. **7**, 14080 (2017).

- [63] H. Plank, J. Pernul, S. Gebert, S. N. Danilov, J. König-Otto, S. Winnerl, M. Lanius, J. Kampmeier, G. Mussler, I. Aguilera, D. Grützmacher, and S. D. Ganichev, *Infrared/terahertz spectra of the photogalvanic effect in (Bi,Sb)Te based three-dimensional topological insulators*, Phys. Rev. Materials **2**, 024202 (2018).
- [64] J. Sánchez-Barriga, M. Battiato, E. Golias, A. Varykhalov, L. V. Yashina, O. Kornilov, and O. Rader, *Laser-induced persistent photovoltage on the surface of a ternary topological insulator at room temperature*, Appl. Phys. Lett. **110**, 141605 (2017).
- [65] T. V. Menshchikova, S. V. Ereemeev, and E. V. Chulkov, *On the Origin of Two-Dimensional Electron Gas States at the Surface of Topological Insulators*, JETP Lett. **94**, 106 (2011).
- [66] M. G. Vergniory, T. V. Menshchikova, S. V. Ereemeev, and E. V. Chulkov, *Ab initio study of 2DEG at the surface of topological insulator Bi_2Te_3* , JETP Letters **95**, 213 (2012).
- [67] M. Hajlaoui, E. Papalazarou, J. Mauchain, Z. Jiang, I. Miotkowski, Y. P. Chen, A. Taleb-Ibrahimi, L. Perfetti, and M. Marsi, *Time Resolved Ultrafast Arpes for the Study of Topological Insulators: The Case of Bi_2Te_3* , Eur. Phys. J.-Spec. Top. **222**, 1271 (2013).
- [68] C. Cacho, A. Crepaldi, M. Battiato, J. Braun, F. Cilento, M. Zacchigna, M. C. Richter, O. Heckmann, E. Springate, Y. Liu, S. S. Dhesi, H. Berger, P. Bugnon, K. Held, M. Grioni, H. Ebert, K. Hricovini, J. Minar, and F. Parmigiani, *Momentum-Resolved Spin Dynamics of Bulk and Surface Excited States in the Topological Insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. Lett. **114**, 097401 (2015).
- [69] M. Neupane, S.-Y. Xu, Y. Ishida, S. Jia, B. M. Fregoso, C. Liu, I. Belopolski, G. Bian, N. Alidoust, T. Durakiewicz, V. Galitski, S. Shin, R. J. Cava, and M. Z. Hasan, *Gigantic Surface Lifetime of an Intrinsic Topological Insulator*, Phys. Rev. Lett. **115**, 116801 (2015).
- [70] J. Sánchez-Barriga, E. Golias, A. Varykhalov, J. Braun, L. V. Yashina, R. Schumann, J. Minár, H. Ebert, O. Kornilov, and O. Rader, *Ultrafast spin-polarization control of Dirac fermions in topological insulators*, Phys. Rev. B **93**, 155426 (2016).
- [71] J. Sánchez-Barriga, M. Battiato, M. Krivenkov, E. Golias, A. Varykhalov, A. Romualdi, L. V. Yashina, J. Minár, O. Kornilov, H. Ebert, K. Held, and J. Braun, *Subpicosecond spin dynamics of excited states in the topological insulator Bi_2Te_3* , Phys. Rev. B **95**, 125405 (2017).

- [72] N. Munisa, E. E. Krasovskii, Y. Ishida, K. Sumida, J. Chen, T. Yoshikawa, E. V. Chulkov, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, S. Shin, and A. Kimura, *Ultrafast dynamics of an unoccupied surface resonance state in $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$* , Phys. Rev. B **97**, 115303 (2018).
- [73] P. M. Echenique, R. Berndt, E. V. Chulkov, T. Fauster, A. Goldmann, and U. Höfer, *Decay of electronic excitations at metal surfaces*, Surf. Sci. Rep. **52**, 219 (2004).
- [74] A. Einstein, *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*, Ann. Phys. **17**, 132 (1905).
- [75] F. Reinert and S. Hüfner, *Photoemission Spectroscopy - from Early Days to Recent Applications*, New J. Phys. **7**, 1 (2005).
- [76] J. Pendry, *Theory of photoemission*, Surf. Sci. **57**, 679 (1976).
- [77] M. P. Seah and W. A. Dench, *Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces: A Standard Data Base for Electron Inelastic Mean Free Paths in Solids*, Surf. Interface Anal. **1**, 2 (1979).
- [78] M. Michiardi, I. Aguilera, M. Bianchi, V. E. de Carvalho, L. O. Ladeira, N. G. Teixeira, E. A. Soares, C. Friedrich, S. Blügel, and P. Hofmann, *Bulk band structure of Bi_2Te_3* , Phys. Rev. B **90**, 075105 (2014).
- [79] L. Plucinski, G. Mussler, J. Krumrain, A. Herdt, S. Suga, D. Grützmacher, and C. M. Schneider, *Robust surface electronic properties of topological insulators: Bi_2Te_3 films grown by molecular beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **98**, 222503 (2011).
- [80] Y. Liu, G. Bian, T. Miller, M. Bissen, and T.-C. Chiang, *Topological limit of ultrathin quasi-free-standing Bi_2Te_3 films grown on $\text{Si}(111)$* , Phys. Rev. B **85**, 195442 (2012).
- [81] D. Niesner, T. Fauster, S. V. Eremeev, T. V. Menshchikova, Y. M. Koroteev, A. P. Protogenov, E. V. Chulkov, O. E. Tereshchenko, K. A. Kokh, O. Alekperov, A. Nadjafov, and N. Mamedov, *Unoccupied topological states on bismuth chalcogenides*, Phys. Rev. B **86**, 205403 (2012).
- [82] S. Souma, K. Eto, M. Nomura, K. Nakayama, T. Sato, T. Takahashi, K. Segawa, and Y. Ando, *Topological Surface States in Lead-Based Ternary Telluride $\text{Pb}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_4$* , Phys. Rev. Lett. **108**, 116801 (2012).
- [83] L. Plucinski, A. Herdt, S. Fahrenndorf, G. Bihlmayer, G. Mussler, S. Döring, J. Kampmeier, F. Matthes, D. E. Bürgler, D. Grützmacher, S. Blügel, and C. M.

- Schneider, *Electronic structure, surface morphology, and topologically protected surface states of Sb_2Te_3 thin films grown on $\text{Si}(111)$* , J. Appl. Phys. **113**, 053706 (2013).
- [84] S. Muff, F. von Rohr, G. Landolt, B. Slomski, A. Schilling, R. J. Cava, J. Osterwalder, and J. H. Dil, *Separating the bulk and surface n - to p -type transition in the topological insulator $\text{GeBi}_{4-x}\text{Sb}_x\text{Te}_7$* , Phys. Rev. B **88**, 035407 (2013).
- [85] R. T. Williams, J. C. Rife, T. R. Royt, and M. N. Kabler, *Photoelectrons Spectroscopy of II-VI Semiconductors under Cooperative UV and Visible Excitation*, J. Vac. Sci. Technol. **19**, 367 (1981).
- [86] K. Giesen, F. Hage, F. J. Himpsel, H. J. Riess, and W. Steinmann, *2-Photon Photoemission Via Image-Potential States*, Phys. Rev. Lett. **55**, 300 (1985).
- [87] R. T. Williams, T. R. Royt, J. C. Rife, J. P. Long, and M. N. Kabler, *Picosecond Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy of ZnTe* , J. Vac. Sci. Technol. **21**, 509 (1982).
- [88] T. Hertel, E. Knoesel, M. Wolf, and G. Ertl, *Ultrafast Electron Dynamics at $\text{Cu}(111)$: Response of an Electron Gas to Optical Excitation*, Phys. Rev. Lett. **76**, 535 (1996).
- [89] H. Petek and S. Ogawa, *Femtosecond Time-Resolved Two-Photon Photoemission Studies of Electron Dynamics in Metals*, Prog. Surf. Sci. **56**, 239 (1997).
- [90] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, W. Weber, R. Burgermeister, D. Oberli, and H. C. Siegmann, *Ultrafast Spin-Dependent Electron Dynamics in fcc Co*, Phys. Rev. Lett. **79**, 5158 (1997).
- [91] N. H. Ge, C. M. Wong, R. L. Lingle, J. D. McNeill, K. J. Gaffney, and C. B. Harris, *Femtosecond Dynamics of Electron Localization at Interfaces*, Science **279**, 202 (1998).
- [92] C. Reuß, I. L. Shumay, U. Thomann, M. Kutschera, M. Weinelt, T. Fauster, and U. Höfer, *Control of the Dephasing of Image-Potential States by CO Adsorption on $\text{Cu}(100)$* , Phys. Rev. Lett. **82**, 153 (1999).
- [93] A. Schäfer, I. L. Shumay, M. Wiets, M. Weinelt, T. Fauster, E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and P. M. Echenique, *Lifetimes of Unoccupied Surface States on $\text{Pd}(111)$* , Phys. Rev. B **61**, 13159 (2000).
- [94] M. Roth, M. T. Pickel, J. X. Wang, M. Weinelt, and T. Fauster, *Electron Scattering at Steps: Image-Potential States on $\text{Cu}(119)$* , Phys. Rev. Lett. **88**, 096802 (2002).

- [95] M. Weinelt, *Time-Resolved Two-Photon Photoemission from Metal Surfaces*, J. Phys.-Condens. Mat. **14**, R1099 (2002).
- [96] K. Boger, M. Weinelt, and T. Fauster, *Scattering of Hot Electrons by Adatoms at Metal Surfaces*, Phys. Rev. Lett. **92**, 126803 (2004).
- [97] S. Link, H. A. Dürr, G. Bihlmayer, S. Blügel, W. Eberhardt, E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and P. M. Echenique, *Femtosecond Electron Dynamics of Image-Potential States on Clean and Oxygen-Covered Pt(111)*, Phys. Rev. B **63**, 115420 (2001).
- [98] X. J. Shen, H. Kwak, A. M. Radojevic, S. Smadici, D. Mocuta, and R. M. Osgood, *Momentum-Resolved Excited-Electron Lifetimes on Stepped Cu(775)*, Chem. Phys. Lett. **351**, 1 (2002).
- [99] A. D. Miller, I. Bezel, K. J. Gaffney, S. Garrett-Roe, S. H. Liu, P. Szymanski, and C. B. Harris, *Electron Solvation in Two Dimensions*, Science **297**, 1163 (2002).
- [100] C. Gahl, U. Bovensiepen, C. Frischkorn, and M. Wolf, *Ultrafast Dynamics of Electron Localization and Solvation in Ice Layers on Cu(111)*, Phys. Rev. Lett. **89**, 107402 (2002).
- [101] X. Y. Zhu, *Electronic Structure and Electron Dynamics at Molecule-Metal Interfaces: Implications for Molecule-Based Electronics*, Surf. Sci. Rep. **56**, 1 (2004).
- [102] L. Perfetti, P. A. Loukakos, M. Lisowski, U. Bovensiepen, H. Berger, S. Biermann, P. S. Cornaglia, A. Georges, and M. Wolf, *Time Evolution of the Electronic Structure of 1t-TaS₂ through the Insulator-Metal Transition*, Phys. Rev. Lett. **97**, 067402 (2006).
- [103] U. Bovensiepen, *Coherent and Incoherent Excitations of the Gd(0001) Surface on Ultrafast Timescales*, J. Phys.-Condens. Mat. **19**, 083201 (2007).
- [104] C. H. Schwalb, S. Sachs, M. Marks, A. Schöll, F. Reinert, E. Umbach, and U. Höfer, *Electron Lifetime in a Shockley-Type Metal-Organic Interface State*, Phys. Rev. Lett. **101**, 146801 (2008).
- [105] S. Steil, N. Großmann, M. Laux, A. Ruffing, D. Steil, M. Wiesenmayer, S. Mathias, O. L. A. Monti, M. Cinchetti, and M. Aeschlimann, *Spin-dependent trapping of electrons at spinterfaces*, Nat. Phys. **9**, 242 (2013).
- [106] U. Höfer, I. L. Shumay, C. Reuß, U. Thomann, W. Wallauer, and T. Fauster, *Time-Resolved Coherent Photoelectron Spectroscopy of Quantized Electronic States on Metal Surfaces*, Science **277**, 1480 (1997).

- [107] I. L. Shumay, U. Höfer, C. Reuß, U. Thomann, W. Wallauer, and T. Fauster, *Lifetimes of image-potential states on Cu(100) and Ag(100) surfaces measured by femtosecond time-resolved two-photon photoemission*, Phys. Rev. B **58**, 13974 (1998).
- [108] W. Berthold, U. Höfer, P. Feulner, and D. Menzel, *Influence of Xe adlayer morphology and electronic structure on image-potential state lifetimes of Ru(0001)*, Chem. Phys. **251**, 123 (2000).
- [109] W. Berthold, J. Gütde, P. Feulner, and U. Höfer, *Resonant interband scattering of image-potential states*, Appl. Phys. B **73**, 865 (2001).
- [110] W. Berthold, U. Höfer, P. Feulner, E. V. Chulkov, V. M. Silkin, and P. M. Echenique, *Momentum-Resolved Lifetimes of Image-Potential States on Cu(100)*, Phys. Rev. Lett. **88**, 056805 (2002).
- [111] W. Berthold, P. Feulner, and U. Höfer, *Decoupling of image-potential states by Ar mono- and multilayers*, Chem. Phys. Lett. **358**, 502 (2002).
- [112] W. Berthold, F. Rebentrost, P. Feulner, and U. Höfer, *Influence of Ar, Kr, and Xe layers on the energies and lifetimes of image-potential states on Cu(100)*, Appl. Phys. A **78**, 131 (2004).
- [113] M. Rohleder, W. Berthold, J. Gütde, and U. Höfer, *Time-Resolved Two-Photon Photoemission of Buried Interface States in Ar/Cu(100)*, Phys. Rev. Lett. **94**, 017401 (2005).
- [114] M. Rohleder, K. Duncker, W. Berthold, J. Gütde, and U. Höfer, *Momentum-resolved dynamics of Ar/Cu(100) interface states probed by time-resolved two-photon photoemission*, New J. Phys. **7**, 103 (2005).
- [115] J. Gütde and U. Höfer, *Femtosecond time-resolved studies of image-potential states at surfaces and interfaces of rare-gas adlayers*, Prog. Surf. Sci. **80**, 49 (2005).
- [116] J. Gütde, W. Berthold, and U. Höfer, *Dynamics of Electronic Transfer Processes at Metal/Insulator Interfaces*, Chem. Rev. **106**, 4261 (2006).
- [117] J. Gütde, M. Rohleder, and U. Höfer, *Time-resolved two-color interferometric photoemission of image-potential states on Cu(100)*, Appl. Phys. A **85**, 345 (2006).
- [118] M. Rohleder, W. Berthold, J. Gütde, and U. Höfer, *Photoelectron spectroscopy of Ar/Cu(100) interface states*, Appl. Phys. A **88**, 527 (2007).

- [119] J. Gdde and U. Hfer, *Kohrenz an Oberflchen*, Physik Journal **7(11)**, 33 (2008).
- [120] A. Damm, K. Schubert, J. Gdde, and U. Hfer, *Observation of the transition from image-potential states to resonances on argon-covered Cu(111) and Ag(111) by time-resolved two-photon photoemission*, Phys. Rev. B **80**, 205425 (2009).
- [121] M. Winter, E. V. Chulkov, and U. Hfer, *Trapping of Image-Potential Resonances on a Free-Electron-Like Surface*, Phys. Rev. Lett. **107**, 236801 (2011).
- [122] M. Marks, C. H. Schwalb, K. Schubert, J. Gdde, and U. Hfer, *Quantum-beat spectroscopy of image-potential resonances*, Phys. Rev. B **84**, 245402 (2011).
- [123] N. Armbrust, J. Gdde, P. Jakob, and U. Hfer, *Time-resolved two-photon photoemission of unoccupied electronic states of periodically rippled graphene on Ru(0001)*, Phys. Rev. Lett. **108**, 056801 (2012).
- [124] K. Schubert, A. Damm, S. V. Eremeev, M. Marks, M. Shibuta, W. Berthold, J. Gdde, A. G. Borisov, S. S. Tsirkin, E. V. Chulkov, and U. Hfer, *Momentum-resolved electron dynamics of image-potential states on Cu and Ag surfaces*, Phys. Rev. B **85**, 205431 (2012).
- [125] S. S. Tsirkin, S. V. Eremeev, E. V. Chulkov, M. Marks, K. Schubert, J. Gdde, and U. Hfer, *Temperature dependence of the dynamics of the first image-potential state on Ag(111)*, Phys. Rev. B **86**, 085424 (2012).
- [126] A. Damm, J. Gdde, P. Feulner, A. Czasch, O. Jagutzki, H. Schmidt-Bcking, and U. Hfer, *Application of a time-of-flight spectrometer with delay-line detector for time- and angle-resolved two-photon-photoemission*, J. Electron Spectrosc. **202**, 74 (2015).
- [127] N. Armbrust, J. Gdde, and U. Hfer, *Formation of Image-Potential States at the Graphene/Metal Interface*, New J. Phys. **17**, 103043 (2015).
- [128] U. Hfer and P. M. Echenique, *Resolubility of Image-Potential Resonances*, Surf. Sci. **643**, 203 (2016).
- [129] N. Armbrust, J. Gdde, U. Hfer, S. Kossler, and P. Feulner, *Spectroscopy and dynamics of a two-dimensional electron gas on ultrathin helium films on Cu(111)*, Phys. Rev. Lett. **116**, 256801 (2016).
- [130] H. Petek, A. P. Heberle, W. Nessler, H. Nagano, S. Kubota, S. Matsunami, N. Moriya, and S. Ogawa, *Optical Phase Control of Coherent Electron Dynamics in Metals*, Phys. Rev. Lett. **79**, 4649 (1997).

- [131] X. F. Cui, C. Wang, A. Argondizzo, S. Garrett-Roe, B. Gumhalter, and H. Petek, *Transient Excitons at Metal Surfaces*, Nat. Phys. **10**, 505 (2014).
- [132] R. Haight, J. Bokor, J. Stark, R. H. Storz, R. R. Freeman, and P. H. Bucksbaum, *Picosecond Time-Resolved Photoemission Study of the InP(110) Surface*, Phys. Rev. Lett. **54**, 1302 (1985).
- [133] R. Haight, J. A. Silberman, and M. I. Lilie, *Novel system for picosecond photoemission spectroscopy*, Rev. Sci. Instrum. **59**, 1941 (1988).
- [134] R. Haight, *Electron Dynamics at Surfaces*, Surf. Sci. Rep. **21**, 277 (1995).
- [135] S. Mathias, L. Miaja-Avila, M. M. Murnane, H. Kapteyn, M. Aeschlimann, and M. Bauer, *Angle-resolved photoemission spectroscopy with a femtosecond high harmonic light source using a two-dimensional imaging electron analyzer*, Rev. Sci. Instrum. **78**, 083105 (2007).
- [136] T. Rohwer, S. Hellmann, M. Wiesenmayer, C. Sohrt, A. Stange, B. Slomski, A. Carr, Y. W. Liu, L. M. Avila, M. Kallane, S. Mathias, L. Kipp, K. Rossnagel, and M. Bauer, *Collapse of Long-Range Charge Order Tracked by Time-Resolved Photoemission at High Momenta*, Nature **471**, 490 (2011).
- [137] R. Wallauer, N. Armbrust, J. Reimann, J. Gdde, and U. Hfer, *Intervalley scattering in MoS₂ imaged by two-photon photoemission with a high-harmonic probe*, Appl. Phys. Lett. **109**, 162102 (2016).
- [138] R. Bertoni, C. W. Nicholson, L. Waldecker, H. Hbener, C. Monney, U. D. Giovanni, M. Puppini, M. Hoesch, E. Springate, R. T. Chapman, C. Cacho, M. Wolf, J. Rubio, and R. Ernstorfer, *Generation and Evolution of Spin-, Valley- and Layer-Polarized Excited Carriers in Inversion-Symmetric WSe₂*, Phys. Rev. Lett. **117**, 277201 (2016).
- [139] P. S. Kirchmann, L. Rettig, D. Nandi, U. Lipowski, M. Wolf, and U. Bovensiepen, *A Time-of-Flight Spectrometer for Angle-Resolved Detection of Low Energy Electrons in Two Dimensions*, Appl. Phys. A-Mater. **91**, 211 (2008).
- [140] F. Schmitt, P. S. Kirchmann, U. Bovensiepen, R. G. Moore, L. Rettig, M. Krenz, J. H. Chu, N. Ru, L. Perfetti, D. H. Lu, M. Wolf, I. R. Fisher, and Z. X. Shen, *Transient Electronic Structure and Melting of a Charge Density Wave in TbTe₃*, Science **321**, 1649 (2008).
- [141] H. Ueba and T. Mii, *Theory of Energy- and Time-Resolved Two-Photon Photoemission from Metal Surfaces - Influence of Pulse Duration and Excitation Condition*, Appl. Phys. A-Mater. **71**, 537 (2000).

- [142] T. Klamroth, P. Saalfrank, and U. Höfer, *Open-system density-matrix approach to image-potential dynamics of electrons at Cu(100): Energy- and time-resolved two-photon photoemission spectra*, Phys. Rev. B **64**, 035420 (2001).
- [143] K. Boger, M. Roth, M. Weinelt, T. Fauster, and P. G. Reinhard, *Linewidths in Energy-Resolved Two-Photon Photoemission Spectroscopy*, Phys. Rev. B **65**, 075104 (2002).
- [144] W. Franz, *Einfluß eines elektrischen Feldes auf eine optische Absorptionskante*, Z. Naturforsch. A **13**, 484 (1958).
- [145] L. V. Keldysh, *Behavior of Non-metallic Crystals in Strong Electric Fields*, J. Exptl. Theoret. Phys. (USSR) **6**, 763 (1958).
- [146] L. V. Keldysh, *Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave*, J. Exptl. Theoret. Phys. (USSR) **20**, 1307 (1965).
- [147] I. Hertel and C. Schulz, *Atome, Moleküle und optische Physik 1: Atomphysik und Grundlagen der Spektroskopie, Springer-Lehrbuch* (Springer, Berlin Heidelberg, 2008).
- [148] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Holt, Rinehart and Winston, New York, 1976).
- [149] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg, München Wien, 1999).
- [150] H. Ibach and H. Lüth, *Festkörperphysik: Einführung in die Grundlagen, Springer-Lehrbuch* (Springer, Berlin Heidelberg, 2008).
- [151] F. Bloch, *Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern*, Z. Phys. **52**, 555 (1929).
- [152] H. Haug, *Statistische Physik: Gleichgewichtstheorie und Kinetik, Springer-Lehrbuch* (Springer, Berlin Heidelberg, 2006).
- [153] J. M. Ziman, *Prinzipien der Festkörpertheorie* (Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main, 1992).
- [154] N. Bellomo, P. LeTallec, and B. Perthame, *The solution of the nonlinear Boltzmann equation: A survey of analytic and computational methods*, Comput. Math. Appl. **30**, 21 (1995).
- [155] R. Höfer, Persönliche Mitteilung, 2018.
- [156] P. Brumer and M. Shapiro, *Control of Unimolecular Reactions Using Coherent-Light*, Chem. Phys. Lett. **126**, 541 (1986).

- [157] E. Dupont, P. B. Corkum, H. C. Liu, M. Buchanan, and Z. R. Wasilewski, *Phase-Controlled Currents in Semiconductors*, Phys. Rev. Lett. **74**, 3596 (1995).
- [158] A. Haché, Y. Kostoulas, R. Atanasov, J. L. P. Hughes, J. E. Sipe, and H. M. van Driel, *Observation of Coherently Controlled Photocurrent in Unbiased, Bulk GaAs*, Phys. Rev. Lett. **78**, 306 (1997).
- [159] D. Cote, J. M. Fraser, M. DeCamp, P. H. Bucksbaum, and H. M. van Driel, *Thz Emission from Coherently Controlled Photocurrents in GaAs*, Appl. Phys. Lett. **75**, 3959 (1999).
- [160] O. Vänskä, I. Tittonen, S. W. Koch, and M. Kira, *Coherent Terahertz Control of Vertical Transport in Semiconductor Heterostructures*, Phys. Rev. Lett. **114**, 116802 (2015).
- [161] R. W. Newson, A. A. Green, M. C. Hersam, and H. M. van Driel, *Coherent injection and control of ballistic charge currents in single-walled carbon nanotubes and graphite*, Phys. Rev. B **83**, 115421 (2011).
- [162] R. A. Muniz and J. E. Sipe, *Coherent control of optical injection of spin and currents in topological insulators*, Phys. Rev. B **89**, 205113 (2014).
- [163] D. A. Bas, K. Vargas-Velez, S. Babakiray, T. A. Johnson, P. Borisov, T. D. Stănescu, D. Lederman, and A. D. Bristow, *Coherent control of injection currents in high-quality films of Bi_2Se_3* , Appl. Phys. Lett. **106**, 041109 (2015).
- [164] A. Junck, G. Refael, and F. von Oppen, *Photocurrent Response of Topological Insulator Surface States*, Phys. Rev. B **88**, 075144 (2013).
- [165] S. D. Ganichev and W. Prettl, *Spin Photocurrents in Quantum Wells*, J. Phys.-Condens. Mat. **15**, R935 (2003).
- [166] H. Plank, L. E. Golub, S. Bauer, V. V. Bel'kov, T. Herrmann, P. Olbrich, M. Eschbach, L. Plucinski, C. M. Schneider, J. Kampmeier, M. Lanis, G. Mussler, D. Grützmacher, and S. D. Ganichev, *Photon drag effect in $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ three-dimensional topological insulators*, Phys. Rev. B **93**, 125434 (2016).
- [167] J. W. McIver, D. Hsieh, H. Steinberg, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, *Control over Topological Insulator Photocurrents with Light Polarization*, Nat. Nanotechnol. **7**, 96 (2012).
- [168] P. Olbrich, L. E. Golub, T. Herrmann, S. N. Danilov, H. Plank, V. V. Bel'kov, G. Mussler, C. Weyrich, C. M. Schneider, J. Kampmeier, D. Grützmacher, L. Plucinski, M. Eschbach, and S. D. Ganichev, *Room-Temperature High-Frequency Transport of Dirac Fermions in Epitaxially Grown Sb_2Te_3 - and Bi_2Te_3 -Based Topological Insulators*, Phys. Rev. Lett. **113**, 096601 (2014).

- [169] C. Kastl, C. Karnetzky, H. Karl, and A. W. Holleitner, *Ultrafast Helicity Control of Surface Currents in Topological Insulators with near-Unity Fidelity*, Nat. Commun. **6**, 6617 (2015).
- [170] L. Braun, G. Mussler, A. Hruban, M. Konczykowski, T. Schumann, M. Wolf, M. Münzenberg, L. Perfetti, and T. Kampfrath, *Ultrafast photocurrents at the surface of the three-dimensional topological insulator Bi_2Se_3* , Nature Commun. **7**, 13259 (2016).
- [171] W. Berthold, *Zeitaufgelöste Zweiphotonen-Photoemission an den Bildpotentialzuständen der sauberen und edelgasbedeckten $\text{Cu}(100)$ - und $\text{Ru}(0001)$ -Oberfläche*, Dissertation, Technische Universität München, August 2001.
- [172] M. Rohleder, *Kohärente Mehrphotonen-Photoemission an den Bildpotentialzuständen der $\text{Cu}(100)$ -Oberfläche*, Diplomarbeit, Philipps-Universität Marburg, 2003.
- [173] A. Damm, *Untersuchung der Elektronendynamik von $\text{Si}(111) 7 \times 7$ und Entwicklung eines Flugzeitspektrometers für die zeit- und winkelaufgelöste Zweiphotonen-Photoemission*, Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2011.
- [174] M. Rohleder, *Zeitaufgelöste Detektion eines kohärent kontrollierten Oberflächenstroms und Untersuchung der Elektronendynamik in $\text{Ar}/\text{Cu}(100)$ -Grenzflächenzuständen mit Zweiphotonen-Photoemission*, Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2007.
- [175] C. M. Heyl, J. Gädde, A. L’Huillier, and U. Höfer, *High-Order Harmonic Generation with μJ Laser Pulses at High Repetition Rates*, J. Phys. B-At. Mol. Opt. **45**, 074020 (2012).
- [176] M. Hohenleutner, *Sub-cycle quantum motion in solids under strong terahertz fields*, Dissertation, Universität Regensburg, 2017.
- [177] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, *Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities*, J. Opt. Soc. Am. B **25**, B6 (2008).
- [178] C. D. Wagner, W. M. Riggs, L. E. Davis, J. F. Moulder, and G. E. Muilenberg (Editor), *Handbook of X-Ray Photoelektron Spectroscopy* (Perkin-Elmer Corporation, Eden Prairie, Minnesota, USA, 1979).
- [179] M. Eschbach, E. Mlynczak, J. Kellner, J. Kampmeier, M. Lanius, E. Neumann, C. Weyrich, M. Gehlmann, P. Gospodaric, S. Döring, G. Mussler, N. Demarina,

- M. Luysberg, G. Bihlmayer, T. Schäpers, L. Plucinski, S. Blügel, M. Morgens-
tern, C. M. Schneider, and D. Grützmacher, *Realization of a vertical topological
p-n junction in epitaxial Sb_2Te_3/Bi_2Te_3 heterostructures*, Nature Commun. **6**,
8816 (2015).
- [180] M. Lanius, J. Kampmeier, C. Weyrich, S. Kölling, M. Schall, P. Schüffegen,
E. Neumann, M. Luysberg, G. Mussler, P. M. Koenraad, T. Schäpers, and D.
Grützmacher, *P-N Junctions in Ultrathin Topological Insulator Sb_2Te_3/Bi_2Te_3
Heterostructures Grown by Molecular Beam Epitaxy*, Cryst. Growth Des. **16**,
2057 (2016).
- [181] J. Krumrain, G. Mussler, S. Borisova, T. Stoica, L. Plucinski, C. Schneider, and
D. Grützmacher, *MBE growth optimization of topological insulator Bi_2Te_3 films*,
J. Cryst. Growth **324**, 115 (2011).
- [182] K. A. Kokh, S. V. Makarenko, V. A. Golyashov, O. A. Shegai, and O. E. Te-
reshchenko, *Melt growth of bulk Bi_2Te_3 crystals with a natural p-n junction*,
CrystEngComm **16**, 581 (2014).
- [183] M. Marks, *Über die Dynamik von Elektronen auf Silber-Einkristalloberflächen,
an metall-organischen Grenzschichten und in PTCDA-Monolagen*, Dissertation,
Philipps-Universität Marburg, 2012.
- [184] R. Haight, *Electron Dynamics at Semiconductor Surfaces and Interfaces*, Chem.
Phys. **205**, 231 (1996).
- [185] Y. Jiang, Y. Wang, M. Chen, Z. Li, C. Song, K. He, L. Wang, X. Chen, X. Ma,
and Q.-K. Xue, *Landau Quantization and the Thickness Limit of Topological
Insulator Thin Films of Sb_2Te_3* , Phys. Rev. Lett. **108**, 016401 (2012).
- [186] L. Zhao, H. Deng, I. Korzhovska, M. Begliarbekov, Z. Chen, E. Andrade, E.
Rosenthal, A. Pasupathy, V. Oganessian, and L. Krusin-Elbaum, *Emergent sur-
face superconductivity in the topological insulator Sb_2Te_3* , Nature Commun. **6**,
8279 (2015).
- [187] M. Hajlaoui, E. Papalazarou, J. Mauchain, L. Perfetti, A. Taleb-Ibrahimi, F.
Navarin, M. Monteverde, P. Auban-Senzier, C. R. Pasquier, N. Moisan, D. Bo-
schetto, M. Neupane, M. Z. Hasan, T. Durakiewicz, Z. Jiang, Y. Xu, I. Miot-
kowski, Y. P. Chen, S. Jia, H. W. Ji, R. J. Cava, and M. Marsi, *Tuning a
Schottky Barrier in a Photoexcited Topological Insulator with Transient Dirac
Cone Electron-Hole Asymmetry*, Nat. Commun. **5**, 3003 (2014).
- [188] S. Zhu, Y. Ishida, K. Kuroda, K. Sumida, M. Ye, J. Wang, H. Pan, M. Taniguchi,
S. Qiao, S. Shin, and A. Kimura, *Ultrafast Electron Dynamics at the Dirac Node
of the Topological Insulator Sb_2Te_3* , Sci. Rep. **5**, 13213 (2015).

- [189] E. Knoesel, A. Hotzel, and M. Wolf, *Ultrafast Dynamics of Hot Electrons and Holes in Copper: Excitation, Energy Relaxation, and Transport Effects*, Phys. Rev. B **57**, 12812 (1998).
- [190] S. Tanaka, T. Ichibayashi, and K. Tanimura, *Dynamics of Bulk-to-Surface Electron Transitions on Si(001)-(2x1) Studied by Time-Resolved Two-Photon Photoemission Spectroscopy*, Phys. Rev. B **79**, 155313 (2009).
- [191] Antimony telluride (Sb_2Te_3) Debye temperature, heat capacity: Datasheet from Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter · Volume 41C: “Non-Tetrahedrally Bonded Elements and Binary Compounds I”.
- [192] J. S. Dyck, W. Chen, C. Uher, C. Drasar, and P. Lost’ak, *Heat Transport in $\text{Sb}_{2-x}\text{V}_x\text{Te}_3$ Single Crystals*, Phys. Rev. B **66**, 125206 (2002).
- [193] K. Wang, D. Graf, and C. Petrovic, *Large magnetothermopower and Fermi surface reconstruction in $\text{Sb}_2\text{Te}_2\text{Se}$* , Phys. Rev. B **89**, 125202 (2014).
- [194] Animation unter <http://dx.doi.org/10.1117/12.2250295.1> [22] oder unter http://www.physik.uni-marburg.de/of/publications/kuroda17spie_video1.mpeg.
- [195] Animation unter <http://dx.doi.org/10.1117/12.2250295.2> [22] oder unter http://www.physik.uni-marburg.de/of/publications/kuroda17spie_video2.mpeg.
- [196] P. M. Echenique, J. M. Pitarke, E. V. Chulkov, and A. Rubio, *Theory of Inelastic Lifetimes of Low-Energy Electrons in Metals*, Chem. Phys. **251**, 1 (2000).
- [197] C. Jozwiak, C.-H. Park, K. Gotlieb, C. Hwang, D.-H. Lee, S. G. Louie, J. D. Denlinger, C. R. Rotundu, R. J. Birgeneau, Z. Hussain, and A. Lanzara, *Photoelectron Spin-Flipping and Texture Manipulation in a Topological Insulator*, Nat. Phys. **9**, 293 (2013).
- [198] S. Ketterl, S. Otto, M. Bastian, C. Gahl, B. Andres, J. Minar, H. Ebert, T. Fauster, J. Braun, and M. Weinelt, *On the Origin of Photocurrents in the Topological Insulator Bi_2Se_3* , Poster Contribution at USD 10 (2017).
- [199] P. U. Jepsen, D. G. Cooke, and M. Koch, *Terahertz spectroscopy and imaging - Modern techniques and applications*, Laser Photonics Rev. **5**, 124 (2010).
- [200] M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert, M. Knorr, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Real-Time Observation of Interfering Crystal Electrons in High-Harmonic Generation*, Nature **523**, 572 (2015).
- [201] T. L. Cocker, D. Peller, P. Yu, J. Repp, and R. Huber, *Tracking the Ultrafast Motion of a Single Molecule by Femtosecond Orbital Imaging*, Nature **539**, 263 (2016).

- [202] F. Langer, M. Hohenleutner, C. P. Schmid, C. Poellmann, P. Nagler, T. Korn, C. Schuller, M. S. Sherwin, U. Huttner, J. T. Steiner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Lightwave-Driven Quasiparticle Collisions on a Subcycle Timescale*, Nature **533**, 225 (2016).
- [203] H. Liu, Y. Li, Y. S. You, S. Ghimire, T. F. Heinz, and D. A. Reis, *High-harmonic generation from an atomically thin semiconductor*, Nat. Phys. **13**, 262 (2016).
- [204] T. Higuchi, C. Heide, K. Ullmann, H. B. Weber, and P. Hommelhoff, *Light-Field-Driven Currents in Graphene*, Nature **550**, 224 (2017).
- [205] F. Giorgianni, E. Chiadroni, A. Rovere, M. Cestelli-Guidi, A. Perucchi, M. Bellaveglia, M. Castellano, D. Di Giovenale, G. Di Pirro, M. Ferrario, R. Pompili, C. Vaccarezza, F. Villa, A. Cianchi, A. Mostacci, M. Petrarca, M. Brahlek, N. Koirala, S. Oh, and S. Lupi, *Strong nonlinear terahertz response induced by Dirac surface states in Bi_2Se_3 topological insulator*, Nature Commun. **7**, 11421 (2016).
- [206] P. Seifert, K. Vaklinova, K. Kern, M. Burghard, and A. Holleitner, *Surface State-Dominated Photoconduction and THz Generation in Topological $\text{Bi}_2\text{Te}_2\text{Se}$ Nanowires*, Nano Lett. **17**, 973 (2017).
- [207] C. W. Luo, H.-J. Chen, C. M. Tu, C. C. Lee, S. A. Ku, W. Y. Tzeng, T. T. Yeh, M. C. Chiang, H. J. Wang, W. C. Chu, J.-Y. Lin, K. H. Wu, J. Y. Juang, T. Kobayashi, C.-M. Cheng, C.-H. Chen, K.-D. Tsuei, H. Berger, R. Sankar, F. C. Chou, and H. D. Yang, *THz Generation and Detection on Dirac Fermions in Topological Insulators*, Adv. Opt. Mater. **1**, 804 (2013).
- [208] G. S. Jenkins, A. B. Sushkov, D. C. Schmadel, N. P. Butch, P. Syers, J. Paglione, and H. D. Drew, *Terahertz Kerr and reflectivity measurements on the topological insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. B **82**, 125120 (2010).
- [209] R. Valdés Aguilar, A. V. Stier, W. Liu, L. S. Bilbro, D. K. George, N. Bansal, L. Wu, J. Cerne, A. G. Markelz, S. Oh, and N. P. Armitage, *Terahertz Response and Colossal Kerr Rotation from the Surface States of the Topological Insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. Lett. **108**, 087403 (2012).
- [210] S. Sim, M. Brahlek, N. Koirala, S. Cha, S. Oh, and H. Choi, *Ultrafast terahertz dynamics of hot Dirac-electron surface scattering in the topological insulator Bi_2Se_3* , Phys. Rev. B **89**, 165137 (2014).
- [211] B. C. Park, T.-H. Kim, K. I. Sim, B. Kang, J. W. Kim, B. Cho, K.-H. Jeong, M.-H. Cho, and J. H. Kim, *Terahertz single conductance quantum and topological phase transitions in topological insulator Bi_2Se_3 ultrathin films*, Nature Commun. **6**, 6552 (2015).

- [212] A. M. Shuvaev, G. V. Astakhov, G. Tkachov, C. Brüne, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, and A. Pimenov, *Terahertz quantum Hall effect of Dirac fermions in a topological insulator*, Phys. Rev. B **87**, 121104 (2013).
- [213] L. Wimmer, G. Herink, D. R. Solli, S. V. Yalunin, K. E. Echternkamp, and C. Ropers, *Terahertz control of nanotip photoemission*, Nat. Phys. **10**, 432 (2014).
- [214] G. Herink, L. Wimmer, and C. Ropers, *Field emission at terahertz frequencies: AC-tunneling and ultrafast carrier dynamics*, New J. Phys. **16**, 123005 (2014).
- [215] L. Wimmer, O. Karnbach, G. Herink, and C. Ropers, *Phase space manipulation of free-electron pulses from metal nanotips using combined terahertz near fields and external biasing*, Phys. Rev. B **95**, 165416 (2017).
- [216] L. Miaja-Avila, C. Lei, M. Aeschlimann, J. L. Gland, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and G. Saathoff, *Laser-Assisted Photoelectric Effect from Surfaces*, Phys. Rev. Lett. **97**, 113604 (2006).
- [217] A. L. Cavalieri, N. Müller, T. Uphues, V. S. Yakovlev, A. Baltuska, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blumel, R. Holzwarth, S. Hendel, M. Drescher, U. Kleineberg, P. M. Echenique, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Heinzmann, *Attosecond Spectroscopy in Condensed Matter*, Nature **449**, 1029 (2007).
- [218] M. Schultze, K. Ramasesha, C. D. Pemmaraju, S. A. Sato, D. Whitmore, A. Gandman, J. S. Prell, L. J. Borja, D. Prendergast, K. Yabana, D. M. Neumark, and S. R. Leone, *Attosecond Band-Gap Dynamics in Silicon*, Science **346**, 1348 (2014).
- [219] S. Neppl, R. Ernstorfer, A. L. Cavalieri, C. Lemell, G. Wachter, E. Magerl, E. M. Bothschafter, M. Jobst, M. Hofstetter, U. Kleineberg, J. V. Barth, D. Menzel, J. Burgdorfer, P. Feulner, F. Krausz, and R. Kienberger, *Direct Observation of Electron Propagation and Dielectric Screening on the Atomic Length Scale*, Nature **517**, 342 (2015).
- [220] F. Siek, S. Neb, P. Bartz, M. Hensen, C. Strüber, S. Fiechter, M. Torrent-Sucarrat, V. M. Silkin, E. E. Krasovskii, N. M. Kabachnik, S. Fritzsche, R. D. Muino, P. M. Echenique, A. K. Kazansky, N. Müller, W. Pfeiffer, and U. Heinzmann, *Angular Momentum-Induced Delays in Solid-State Photoemission Enhanced by Intra-Atomic Interactions*, Science **357**, 1274 (2017).
- [221] U. Bovensiepen, S. Declair, M. Lisowski, P. A. Loukakos, A. Hotzel, M. Richter, A. Knorr, and M. Wolf, *Ultrafast Electron Dynamics in Metals: Real-Time Analysis of a Reflected Light Field Using Photoelectrons*, Phys. Rev. B **79**, 045415 (2009).

- [222] P. W. Smorenburg, J. H. M. Kanter, A. Lassise, G. J. H. Brussaard, L. P. J. Kamp, and O. J. Luiten, *Polarization-dependent ponderomotive gradient force in a standing wave*, Phys. Rev. A **83**, 063810 (2011).
- [223] E. Hecht, *Optics*, 4th ed. (Addison-Wesley Pub. Co Reading, Mass., 1998).
- [224] E. Jones, T. Oliphant, P. Peterson, *et al.*, SciPy: Open source scientific tools for Python, 2001–, [Online; accessed 09.04.2018].
- [225] E. Golias and J. Sánchez-Barriga, *Observation of antiphase coherent phonons in the warped Dirac cone of Bi_2Te_3* , Phys. Rev. B **94**, 161113 (2016).
- [226] W. Richter and C. R. Becker, *A Raman and far-infrared investigation of phonons in the rhombohedral $V_2\text{--}VI_3$ compounds Bi_2Te_3 , Bi_2Se_3 , Sb_2Te_3 and $\text{Bi}_2(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ ($0 < x < 1$), $(\text{Bi}_{1-y}\text{Sb}_y)_2\text{Te}_3$ ($0 < y < 1$)*, Phys. Stat. Sol. (b) **84**, 619 (1977).
- [227] V. Wagner, G. Dolling, B. M. Powell, and G. Landwehr, *Lattice vibrations of Bi_2Te_3* , Phys. Stat. Sol. (b) **85**, 311 (1978).
- [228] Y. Zhao, X. Luo, J. Zhang, J. Wu, X. Bai, M. Wang, J. Jia, H. Peng, Z. Liu, S. Y. Quek, and Q. Xiong, *Interlayer vibrational modes in few-quintuple-layer Bi_2Te_3 and Bi_2Se_3 two-dimensional crystals: Raman spectroscopy and first-principles studies*, Phys. Rev. B **90**, 245428 (2014).
- [229] S. V. Eremeev, G. Landolt, T. V. Menshchikova, B. Slomski, Y. M. Koroteev, Z. S. Aliev, M. B. Babanly, J. Henk, A. Ernst, L. Patthey, A. Eich, A. A. Khajetoorians, J. Hagemester, O. Pietzsch, J. Wiebe, R. Wiesendanger, P. M. Echenique, S. S. Tsirkin, I. R. Amiraslanov, J. H. Dil, and E. V. Chulkov, *Atom-specific spin mapping and buried topological states in a homologous series of topological insulators*, Nature Commun. **3**, 635 (2012).
- [230] S. Xu, Y. Han, X. Chen, Z. Wu, L. Wang, T. Han, W. Ye, H. Lu, G. Long, Y. Wu, J. Lin, Y. Cai, K. M. Ho, Y. He, and N. Wang, *van der Waals Epitaxial Growth of Atomically Thin Bi_2Se_3 and Thickness-Dependent Topological Phase Transition*, Nano Lett. **15**, 2645 (2015).
- [231] M. Garg, M. Zhan, T. T. Luu, H. Lakhota, T. Klostermann, A. Guggenmos, and E. Goulielmakis, *Multi-Petahertz Electronic Metrology*, Nature **538**, 359 (2016).
- [232] H. Z. Liu, Y. L. Li, Y. S. You, S. Ghimire, T. F. Heinz, and D. A. Reis, *High-Harmonic Generation from an Atomically Thin Semiconductor*, Nat. Phys. **13**, 262 (2017).

- [233] K. Schubert, *Ultraschnelle Ladungsträgerdynamik in Bildpotentialresonanzen und an Halbleiter-Isolator-Grenzflächen*, Dissertation, Philipps-Universität Marburg, 2007.
- [234] Scienta Omicron AB, DA30 Software Manual v3.0, 2018.
- [235] J. Crank and P. Nicolson, *A practical method for numerical evaluation of solutions of partial differential equations of the heat-conduction type*, Adv. Comput. Math. **6**, 207 (1996).

Publikationen und Konferenzbeiträge

Veröffentlichungen im Rahmen dieser Arbeit

J. Reimann, J. GÜdde, K. Kuroda, E. V. Chulkov, and U. Höfer

Spectroscopy and dynamics of unoccupied electronic states of the topological insulators Sb_2Te_3 and Sb_2Te_2S

Phys. Rev. B **90**, 081106(R) (2014)

K. Kuroda, J. Reimann, J. GÜdde, and U. Höfer

Generation of Transient Photocurrents in the Topological Surface State of Sb_2Te_3 by Direct Optical Excitation with Midinfrared Pulses

Phys. Rev. Lett. **116**, 076801 (2016)

K. Kuroda, J. Reimann, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, J. GÜdde, and U. Höfer

Ultrafast energy- and momentum-resolved surface Dirac photocurrents in the topological insulator Sb_2Te_3

Phys. Rev. B **95**, 081103(R) (2017)

K. Kuroda, J. Reimann, J. GÜdde, and U. Höfer

Momentum space view of the ultrafast dynamics of surface photocurrents on topological insulators

Proc. SPIE **10102**, 101020Q (2017)

J. Reimann, S. Schlauderer, C. P. Schmid, F. Langer, S. Baierl, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, C. Lange, J. GÜdde, U. Höfer, and R. Huber

Subcycle observation of lightwave-driven Dirac currents in a topological surface band

Nature **562**, 396 (2018)

weitere Veröffentlichungen

R. Wallauer, J. Reimann, N. Armbrust, J. GÜdde, and U. Höfer

Intervalley scattering in MoS_2 imaged by two-photon photoemission with a high-harmonic probe

Appl. Phys. Lett. **109**, 162102 (2016)

ausgewählte Beiträge zu internationalen Konferenzen

J. Gütde, J. Reimann, U. Höfer

Spectroscopy and dynamics of unoccupied electronic states of the topological insulators Sb_2Te_3 and Sb_2Te_2S studied by time- and angle-resolved 2PPE

New Trends in Topological Insulators 2014

NTTI 2014, Berlin, Germany, 2014

K. Kuroda, J. Reimann, J. Gütde, U. Höfer

Ultrafast Electron Dynamics of the Topological Insulator Sb_2Te_3 Studied with Tunable Pump Photon Energies

New Trends in Topological Insulators 2015

NTTI 2015, Donostia-San Sebastian, Spain, 2015

J. Reimann, K. Kuroda, J. Gütde, U. Höfer

Ultrafast dynamics of photocurrents in the Dirac cone surface state of a topological insulator

International Conference on Internal Interfaces

ICII-2016, Marburg, Germany, 2016

J. Reimann, K. Kuroda, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, J. Gütde, U. Höfer

Optical control of ultrafast currents in the topological surface state of Sb_2Te_3

16th International Conference on the Formation of Semiconductor Interfaces

ICFSI 16, Hannover, Germany, 2017

„Outstanding Poster Award“

J. Reimann, S. Schlauderer, C. P. Schmid, F. Langer, S. Baierl, K. A. Kokh,

O. E. Tereshchenko, A. Kimura, C. Lange, J. Gütde, R. Huber, U. Höfer

Lightwave-driven Dirac currents in a subcycle band structure movie

Postdeadline Session Talk

XXI International Conference on Ultrafast Phenomena

UP 2018, Hamburg, Germany, 2018

Wissenschaftlicher Werdegang

07/2006 Allgemeine Hochschulreife
Max-Steenbeck-Gymnasium, Cottbus

11/2007 – 06/2012 Stipendiat der Studienstiftung des deutschen Volkes

10/2007 – 07/2010 Studium der Physik (B. Sc.)
Philipps-Universität Marburg

07/2010 Bachelor of Science
Bachelorarbeit in der Arbeitsgruppe Oberflächendynamik
bei Prof. Dr. U. Höfer:
Optische Frequenzverdopplung der GaP/Si(001)-Grenzfläche

10/2010 – 11/2012 Studium der Physik (M. Sc.)
Philipps-Universität Marburg

11/2012 Master of Science
Masterarbeit in der Arbeitsgruppe Oberflächendynamik
bei Prof. Dr. U. Höfer:
*2-Photonen-Photoemissions-Untersuchungen
am topologischen Isolator Bi_2Se_3*

seit 02/2013 Wissenschaftlicher Mitarbeiter und Doktorand in der
Arbeitsgruppe Oberflächendynamik bei Prof. Dr. U. Höfer:
*Ladungsträgerdynamik und Photoströme
im Dirac-Kegel topologischer Isolatoren*

Danksagung

Zuallererst möchte ich meinem Doktorvater Prof. Dr. Ulrich Höfer für die großartige Möglichkeit danken, mich auf einem so interessanten und sich schnell entwickelnden Themengebiet promovieren zu lassen. Ich bin dabei besonders dankbar für die, seit meiner Bachelorarbeit anhaltende, intensive Betreuung und die jederzeit bestehende Möglichkeit Ergebnisse, Interpretationen und offene Fragestellungen zu diskutieren.

Prof. Dr. Martin Koch danke ich für sein Interesse an meiner Arbeit und darüber hinaus für die Erstellung des Zweitgutachtens. Prof. Dr. Florian Gebhard danke ich für die Bereitschaft in der Prüfungskommission mitzuwirken.

Ich möchte Prof. Dr. Rupert Huber dafür danken, dass ich, durch die Kooperation der Arbeitsgruppen in Marburg und Regensburg, meiner Arbeit einen so interessanten Aspekt hinzufügen konnte. Natürlich gilt mein Dank auch all jenen Mitgliedern der AG Huber in Regensburg, die an der Realisierung dieses faszinierenden Experimentes beteiligt waren.

Meine Zeit in Marburg war besonders von PD Dr. Jens Güdde und Dr. Kenta Kuroda geprägt. Die über Jahre immer zur Verfügung stehende Unterstützung von Jens, egal ob es um das Justieren des Lasers, die Analyse neuer Ergebnisse oder den Umzug ganzer Vakuumkammern in andere Städte ging, hat mich immer wieder von Neuem beeindruckt. Das gemeinsame Messen und Interpretieren mit Jens und Kenta hat viel zu meinem Verständnis der Physik in meinen Proben beigetragen. Vielen Dank dafür.

Ich danke natürlich auch all meinen Kollegen in der Arbeitsgruppe Oberflächenphysik, nicht nur für die Hilfsbereitschaft im Labor und Unterstützung im Messalltag, sondern ganz besonders für die kollegiale Atmosphäre und die vielen, langen Kaffeepausen. Alexa und Alex möchte ich hiermit noch einmal für das Auffinden der unzähligen Rechtschreibfehler in meiner Dissertation danken. Natürlich sollen auch meine drei Bürokollegen Marcel, Andi und Alex nicht unerwähnt bleiben: Die Jahre mit euch waren schön!

Zu guter Letzt möchte ich Katja dafür danken, dass Sie mir immer den Rücken freigehalten hat, mich aufbaute, wenn mal wieder gar nichts mehr im Labor funktionierte und dass Sie es auf wundersame Weise geschafft hat, mich immer wieder zu motivieren!

VIELEN DANK!

